

Quanten-Regenbogenstreuung bei axialer Oberflächen-Gitterführung schneller Atome

Fast Atom Diffraction

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)
im Fach Physik

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I
Humboldt-Universität zu Berlin

von
Dipl.-Phys. Andreas Schüller
geboren am 06.07.1976 in Berlin

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:
Prof. Dr. Dr. h.c. Christoph Markschies

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:
Prof. Dr. Andreas Herrmann

Gutachter:

1. Prof. Dr. Helmut Winter
2. Prof. Dr. Daniel Farias
3. Priv.-Doz. Dr. habil. Jochen Vogt

Tag der mündlichen Prüfung: 26.8.2010

Abstract

This work is devoted to the study of classical and quantum mechanical rainbows in scattering distributions for grazing scattering (angles of incidence of about 1°) of fast atoms (kinetic energies in the keV range) along low indexed crystal directions of atomically flat solid surfaces. Projectile atoms are steered by strings of atoms of the respective crystal direction (axial surface channeling) and detected by means of a position-sensitive detector. The resulting scattering distributions show intensity maxima due to rainbow scattering. From the comparison of measured rainbow angles with trajectory simulations, projectile surface potentials are investigated. For light atoms and molecules, so-called “supernumerary rainbows” arise in the scattering distributions, which can be explained in terms of interference of matter waves only. With decreasing energy, discrete Bragg peaks appear. Their relative intensity depends on the angular positions of the supernumerary rainbows. The corresponding diffraction pattern is called “quantum surface rainbow”. Such quantum phenomena for scattering of atoms with keV energies (de Broglie wavelength 10^{-4} nm) were neither experimentally observed nor predicted, since a persistence of coherence seemed to be impossible. The dependence of the interference patterns on the scattering conditions are investigated in detail, described by semiclassical approximations, and decoherence mechanisms are identified. It is shown that due to its interferometric nature “Fast Atom Diffraction” can be used to deduce the structure of surfaces and the interaction potential with unprecedented accuracy. The feasibility of this method is demonstrated for different classes of materials and superstructures of adsorbates on metal surfaces.

Zusammenfassung

In dieser Dissertation werden klassische und quantenmechanische Regenbögen in den Winkelverteilungen bei streifender Streuung (Einfallswinkeln ca. 1°) von schnellen Atomen (kinetische Energien im Bereich von keV) entlang niedrig indizierter Kristallrichtungen atomar ebener Festkörperoberflächen untersucht. Die Projektilatome werden dabei entlang der Atomketten der jeweiligen Kristallrichtung geführt (axiale Oberflächen-Gitterführung) und mit einem ortsauflösenden Detektor nachgewiesen. Die resultierenden Streuverteilungen zeigen Intensitätsmaxima, die aufgrund von Regenbogenstreuung entstehen. Über den Vergleich gemessener Regenbogenwinkel mit Trajektorienimulationen wird das Projektilatom-Oberfläche-Potential untersucht. Für leichte Atome und Moleküle zeigen sich in den Intensitätsverteilungen sogenannte überzählige Regenbögen, die nur durch Interferenz von Materiewellen erklärbar sind. Mit sinkender Energie werden auch diskrete Bragg-Reflexe auflösbar, deren relative Intensität durch die Winkelpositionen der überzähligen Regenbögen bestimmt wird. Das entsprechende Beugungsmuster wird Quanten-Regenbogen genannt. Solche Quanteneffekte wurden bei der Streuung von Atomen mit Energien von einigen keV (De-Broglie-Wellenlänge 10^{-4} nm) zuvor weder beobachtet noch erwartet, da eine Erhaltung der Kohärenz bisher ausgeschlossen schien. Die Abhängigkeit der Interferenzmuster von den Streubedingungen wurde detailliert untersucht, mit semiklassischen Näherungen beschrieben und Dekohärenzmechanismen identifiziert. Es wird gezeigt, dass Beugung schneller Atome aufgrund der interferometrischen Natur angewandt werden kann, um die Struktur der Oberfläche und das Wechselwirkungspotential mit bisher nicht erreichter Genauigkeit zu bestimmen. Die Anwendbarkeit dieser Methode wurde an verschiedenen Materialklassen und Adsorbat-Überstrukturen nachgewiesen.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	ix
Tabellenverzeichnis	xv
Abkürzungen	xvii
1 Einleitung	3
2 Theoretische Grundlagen	9
2.1 Wechselwirkungspotentiale	9
2.1.1 Interatomare Paar-Potentiale	9
2.1.2 Das Potential zwischen Projektil und Oberfläche	14
2.2 Oberflächen-Gitterführung	17
2.2.1 Streugeometrie	17
2.2.2 Kontinuumsnäherung	20
2.3 Quanten-Regenbogenstreuung	23
2.3.1 Der Regenbogen in der Optik	23
2.3.2 Der klassische Oberflächen-Regenbogen	28
2.3.3 Semiklassische Streutheorie	32
2.3.3.1 Materiewellen	32
2.3.3.2 Interferierende klassische Wege	33
2.3.3.3 Kohärenz	34
2.3.4 Streuung an einer sinusförmigen harten Wand	36
2.3.4.1 Klassische Lösung	37
2.3.4.2 Primitiv semiklassische Lösung	39
2.3.4.3 Die Lösung auf Basis von Besselfunktionen	51
2.3.5 Beugungskarten	57
2.3.6 Trajektorien-Simulation	60
2.3.7 Korrektur der Abweichungen durch ein Potential in Harte-Wand-Näherung	68
3 Experimentelle Grundlagen	73
3.1 Aufbau des Experiments	73
3.1.1 Der Beschleuniger	73

3.1.2	Die UHV-Streukammer	77
3.1.3	Der Detektor	79
3.1.3.1	Funktionsweise	79
3.1.3.2	Arbeitsbereich	80
3.1.3.3	Eichung	82
3.1.3.4	Wobbel-Korrektur	84
3.2	Präparation der Oberflächen	87
3.3	Messprozedur und Auswertung	90
4	Klassische Regenbogenstreuung an Al-Oberflächen	95
4.1	Struktur und Präparation	96
4.2	Regenbögen und Potentiale	99
4.2.1	Experimentelle Beobachtungen	99
4.2.2	Interpretation	105
4.2.3	DFT-Potentiale	110
4.3	Breite der Streuverteilungen	113
5	Beugung an Isolatoroberflächen	117
5.1	LiF(001)	117
5.1.1	Struktur und Präparation	118
5.1.2	Winkelposition der Beugungslinien	119
5.1.3	Übergang von Beugung zu klassischer Streuung	127
5.1.4	Intensität der Beugungsmaxima	140
5.1.5	Das He-LiF(001)-Potential	152
5.1.5.1	Das Celli-Potential	153
5.1.5.2	Superposition von Paar-Potentialen	156
5.1.5.3	DFT-Potentiale	164
5.1.6	Beugungskarten	171
5.1.7	Das Rumpling von LiF(001)	180
5.1.8	Überzählige Regenbögen	185
5.1.9	Beugungsmuster bei azimuthaler Verdrehung	199
5.1.10	Klassische Regenbögen und Potentiale	203
5.2	MgO(001)	215
5.2.1	Struktur und Präparation	215
5.2.2	Winkelposition der Beugungslinien	216
5.2.3	Übergang von Beugung zu klassischer Streuung	220
5.2.4	Intensität der Beugungsmaxima	222
5.2.5	Das He-MgO(001)-Potential	230
5.2.6	Beugungskarten	238
5.2.7	Das Rumpling von MgO(001)	242
5.2.8	Überzählige Regenbögen	247
5.2.9	Regenbögen und Potentiale	249
5.2.9.1	He-MgO(001)	249
5.2.9.2	Ne-MgO(001)	254

6	Beugung an Metalloberflächen	259
6.1	Notwendige Bedingungen für Beugung an Metalloberflächen .	259
6.2	Ni(110)	263
6.2.1	Struktur und Präparation	263
6.2.2	Winkelposition der Beugungslinien	264
6.2.3	Intensität der Beugungsmaxima	266
6.2.4	Übergang von Beugung zu klassischer Streuung	271
6.2.5	Regenbögen und Potentiale	274
6.2.5.1	He-Ni(110)	274
6.2.5.2	Ne-Ni(110)	276
6.2.5.3	Ar-Ni(110)	278
7	Beugung an Adsorbat-Überstrukturen	283
7.1	c(1x3)S/Fe(110) und c(2x2)O/Fe(110)	285
7.1.1	Struktur und Präparation	285
7.1.2	Winkelposition der Beugungslinien	288
7.1.3	Intensität der Beugungsmaxima	293
7.1.4	Potentiale und Korrektur der Harte-Wand-Näherung .	304
7.1.5	Vertikale Position des adsorbierten Sauerstoffs	309
7.1.6	Überzählige Regenbögen	314
7.2	„(12x16)S/Fe(110)“	319
7.2.1	Struktur und Präparation	319
7.2.2	Winkelposition der Beugungslinien	322
8	Zusammenfassung und Ausblick	327
8.1	Zusammenfassung	327
8.2	Ausblick	333
	Literaturverzeichnis	337
	Publikationen des Autors	373
	Konferenzbeiträge des Autors	377
	Danksagung	379

Abbildungsverzeichnis

2.1	Äquipotentialfläche $V(x, y, z) = 3 \text{ eV}$ für He-LiF(001).	15
2.2	Skizze Streugeometrie.	18
2.3	Ablenkfunktion für Streuung von Licht am Wassertropfen. . .	23
2.4	Atmosphärischer Regenbogen.	24
2.5	Skizze Reflexion von Licht an Wassertropfen.	25
2.6	Simulierter atmosphärischer Regenbogen.	26
2.7	Vergleich klassische Intensität und Interferenzmuster.	26
2.8	Simulierte Trajektorien und gemessene Intensitätsverteilungen für $\text{Ar} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle \text{Ag}(111)$	29
2.9	Ablenkfunktion für $\text{Ar} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle \text{Ag}(111)$	30
2.10	Regenbogenstreuung von Licht an Wellblech.	31
2.11	Ablenkfunktion für sinusförmige harte Wand.	38
2.12	Interferenz von Trajektorien bei Streuung an einer sinusförmigen harten Wand.	39
2.13	Fokussierung bei Reflexion an einer sinusförmigen Wand. . .	41
2.14	Phasendifferenz und überzählige Regenbögen bei Reflexion von He an einer sinusförmigen harten Wand.	43
2.15	Skizze Atomketten der Oberfläche als Beugungsgitter.	45
2.16	Relative Intensität der Beugungsordnungen aus primitiv semiklassischer Rechnung und Lösung basierend auf J_n^2	48
2.17	Intensität von $n = 0$ bis 2 aus semiklassischer und quantenmechanisch exakter Rechnung sowie Lösung mit J_n^2	50
2.18	Skizze Glorienstreuung.	51
2.19	Bessel-Funktionen J_0 und J_1	55
2.20	Berechnete Beugungskarte für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	58
2.21	Skizze der Trajektorien für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	62
2.22	Ablenkfunktion und Phasendifferenz aus der Simulation. . .	63
2.23	Intensitätsverteilung aus der Simulation $\text{He} \rightarrow \text{LiF}(001)$. . .	64
2.24	Simulation unter Berücksichtigung mehrere Einheitszellen. .	65
2.25	Beugungskarten aus der Trajektorien-simulation.	67
2.26	Skizze unterschiedlicher Potentiale mit gleicher Korrugation. .	69
3.1	EZR1-Anlage.	74

3.2	Aufbau der UHV-Streukammer.	78
3.3	Ortseichung des MCP-Detektors.	82
3.4	Eichung der x-Kanäle des MCP-Detektors.	83
3.5	Beispiel Wobbel-Korrektur.	85
3.6	Vergleich Streuverteilung vor und nach Präparation.	89
3.7	Screenshot des Auswerte-Programms.	91
4.1	Kugelmodell der fcc(110)-, fcc(001)- und fcc(111)-Fläche . .	96
4.2	Targetstromkurve für Al(001).	97
4.3	Targetstromkurve für Al(110) und Al(111).	98
4.4	Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für He, Ne, Ar, Kr $\rightarrow \langle 100 \rangle$ Al(001), Li, Na, K, Cs $\rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle$ Al(111), Ne \rightarrow Al(110) entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$, $\langle 001 \rangle$, $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ und $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ sowie Cr $\rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ Al(001). . . .	99
4.5	Vergleich Abhängigkeit der Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ von E_0 für S und N \rightarrow Al(111) und LiF(001).	101
4.6	Intensitätsverteilungen für N \rightarrow Al(001) und LiF(001) bei $E_{\perp} = \text{konst.}$ für $E_0 = 10 \text{ keV}$ und 70 keV	102
4.7	Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für Cl $\rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle$ Al(001), $\langle 100 \rangle$ Al(001) und $\langle 100 \rangle$ LiF(001).	103
4.8	Vergleich $\theta_{rb}(E_0)$ bei LiF(001) und Metall-Oberflächen. . . .	104
4.9	Einbettungspotential.	106
4.10	Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für Na, Al, Al \rightarrow Al(111) und Al(001) jeweils entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung.	107
4.11	Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für Al und Fe \rightarrow Al(001) entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$	108
4.12	Regenbogenwinkel für Ar $\rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle$, $\langle 11\bar{2} \rangle$ Al(111).	110
4.13	Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für Ar \rightarrow Al(110) entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$, $\langle 001 \rangle$, $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ und $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ im Vergleich mit DFT-Potential. . . .	111
4.14	Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für Al \rightarrow Al(111) entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ und $\langle 11\bar{2} \rangle$ im Vergleich mit DFT-Potential.	112
4.15	Regenbogenwinkel $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für N $\rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle$ Al(111) für ver- schiedene E_0 im Vergleich mit OCB- und DFT-Potential. . .	113
4.16	Polare Halbwertsbreite der Random-Streuverteilungen für N und Ne \rightarrow Al(111) und LiF(001).	114
5.1	Targetstromkurve und Kugelmodell der LiF(001)-Oberfläche. .	118
5.2	Regenbogen, überzählige Regenbögen und Bragg-Reflexe. . .	120
5.3	Beugungsmuster für H, H ₂ und ³ He \rightarrow LiF(001).	121
5.4	Bestimmung von $\Delta\Psi$ aus den Beugungsmustern.	122
5.5	Unabhängigkeit des Beugungslinienabstands $\Delta\Psi$ von Φ_{in} . . .	123
5.6	Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(\lambda_{dB})$ für LiF(001).	124
5.7	Übergang von Beugung zu klassischer Streuung mit Φ_{in} . . .	127
5.8	Vergleich Profil von $n=0$ für Random und $\langle 100 \rangle$ -Richtung. .	128
5.9	Breite der Beugungslinien als Funktion der Strahldivergenz. .	129

5.10	Beugungsmuster bei kollimiertem und divergentem Strahl.	130
5.11	Breite der Beugungslinien als Funktion von Φ_{in} für 1 keV H \rightarrow LiF(001).	131
5.12	Breite der Beugungslinien als Funktion von Φ_{in} für 1 keV He \rightarrow LiF(001).	132
5.13	Breite der Beugungslinien als Funktion von E_0 für He und H \rightarrow LiF(001).	133
5.14	Anpassung von Pseudo-Voigt-Funktionen an das Profil der Beugungslinien mit Φ_{in} als Parameter.	135
5.15	Inkohärenter Anteil bei der Streuung von 1 keV H \rightarrow LiF(001) als Funktion von Φ_{in}	136
5.16	Anpassung von Pseudo-Voigt-Funktionen an das Profil der Beugungslinien mit E_0 als Parameter.	137
5.17	Inkohärenter Anteil bei der Streuung von H \rightarrow LiF(001) als Funktion von E_0	138
5.18	Halbwertsbreiten w_L und w_G der besten Anpassung an das Profil der Beugungslinien für H \rightarrow LiF(001).	139
5.19	Intensitätsverteilungen für $^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{LiF}(001)$ für $\lambda_{\text{dB}\perp} = \text{konst}$ bei unterschiedlichen Φ_{in}	140
5.20	Projizierte Intensität bei $E_0 = \text{konst}$ und $\lambda_{\text{dB}\perp} = \text{konst}$ für un- terschiedliche Φ_{in}	141
5.21	Intensitätsmodulation $n=0$ und 1 für $^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{LiF}(001)$	143
5.22	Beugungsmuster für $^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	145
5.23	Intensitätsmodulation $n=0$ und 1 für $^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	146
5.24	Projizierte Intensität für $^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	147
5.25	Abweichung zwischen Theorie und Experiment als Funktion der Korrugation Δz	149
5.26	Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ des effektiven He-LiF(001)-Potentials für Streuung entlang $\langle 110 \rangle$ -Richtung.	151
5.27	Celli-Potential.	154
5.28	He-Li-Potentiale.	157
5.29	He-F-Potentiale.	159
5.30	Vergleich He-LiF(001)-Potentiale aus Paarpotentialen mit dem DFT-Potential.	160
5.31	Abschätzung des Korrekturfaktors für die Harte-Wand-Nähe- rung für He $\rightarrow \langle 100 \rangle \text{LiF}(001)$	162
5.32	Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ des effektiven He-LiF(001)-Potentials für Streuung entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung.	163
5.33	Vergleich der Intensitätsmodulation von ^3He und ^4He	165
5.34	Axial gemittelttes He-LiF(001)-DFT-Potential.	167
5.35	Vergleich zwischen Wellenpaket-Rechnung und Semiklassik für $n=0$ bei $^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	169
5.36	3D-Beugungskarte für $^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	171
5.37	Experimentelle Beugungskarte für $^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	172

5.38	Berechnete Beugungskarte für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	174
5.39	Beugungskarte aus der Wellenpaket-Rechnung für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	175
5.40	Berechnete Beugungskarten für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$ mit Variation $\Delta z \pm 0,05 \text{ \AA}$	177
5.41	Beugungskarten für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{LiF}(001)$	178
5.42	Literaturwerte für das Rumpling von $\text{LiF}(001)$	180
5.43	Modulation der Intensität für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$ für ver- schiedene Rumpling-Werte δz	182
5.44	Beste Anpassung des Rumpling von $\text{LiF}(001)$	183
5.45	Überzählige Regenbögen bei ${}^3\text{He}$ und ${}^4\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	186
5.46	Vergleich überzählige Regenbögen aus Experiment und Simu- lation für ${}^4\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	187
5.47	Vergleich überzählige Regenbögen zwischen ${}^3\text{He}$ und ${}^4\text{He}$	188
5.48	Überzählige Regenbögen für ${}^4\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{LiF}(001)$	189
5.49	Intensitätsverteilungen für ${}^4\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$ mit $E_{\perp} = \text{konst} = 1,04 \text{ eV}$	190
5.50	Projizierte Intensität ${}^4\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$ $E_{\perp} = \text{konst}$	191
5.51	Überzählige Regenbögen als Funktion von E_0 bei $E_{\perp} = \text{konst}$	192
5.52	Überzählige Regenbögen bei $\lambda_{\text{dB}\perp} = \text{konst}$ für ${}^3\text{He}$ und ${}^4\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	193
5.53	Ablenkwinkel des Quanten-Regenbogen und der überzählige Regenbögen als Funktion von E_{\perp} für ${}^3\text{He} \rightarrow \text{LiF}(001)$	194
5.54	Überzählige Regenbögen für $1 \text{ keV Ne} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	196
5.55	Ablenkwinkel des Quanten-Regenbogen und der überzählige Regenbögen als Funktion von E_{\perp} für ${}^3\text{He} \rightarrow \text{LiF}(001)$	197
5.56	Korrugation des axial gemittelten $\text{Ne-LiF}(001)$ -Potentials.	198
5.57	Beugungsmuster bei azimuthaler Verdrehung gegen die Gitter- führungsrichtung.	199
5.58	$\Psi(\gamma_{\text{in}})$ -Beugungskarte für $1 \text{ keV } {}^4\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	201
5.59	Vergleich experimentelle Streuverteilung und simulierte Tra- jektorien für $\text{Ne} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$	204
5.60	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ für $\text{Ne} \rightarrow \text{LiF}(001)$	205
5.61	Ne-Li- und Ne-F-Potentiale	206
5.62	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ für $\text{Ne}^+ \rightarrow \text{LiF}(001) \rightarrow \text{Ne}^+$	210
5.63	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ für $\text{He} \rightarrow \text{LiF}(001)$	211
5.64	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ für $\text{Kr, Ar, Cl, N} \rightarrow \text{LiF}(001)$	212
5.65	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ für $\text{S} \rightarrow \text{LiF}(001)$	214
5.66	Beugungsmuster für $\text{H}_2 \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$	217
5.67	Beugungsmuster für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$	218
5.68	Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(\lambda_{\text{dB}})$ bei $\text{MgO}(001)$	219
5.69	Halbwertsbreite der Beugungslinien für $\text{He} \rightarrow \text{MgO}(001)$	221
5.70	Beugungsmuster für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{MgO}(001)$	223
5.71	Projizierte Intensität $I(\theta)$ für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{MgO}(001)$	224

5.72	Intensitätsmodulation $n=0$ bis 2 bei ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{MgO}(001)$.	225
5.73	Korrugation $\Delta z(E_\perp)$ des entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung gemittelten He-MgO(001)-Potentials.	226
5.74	Projizierte Intensität $I(\theta)$ für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$.	227
5.75	Korrugation $\Delta z(E_\perp)$ des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten He-MgO(001)-Potentials.	228
5.76	Intensitätsmodulation $n=0$ bis 4 für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$.	229
5.77	Interatomare Potentiale für He-Mg und He-O.	231
5.78	He-MgO(001)-DFT-Potential bei $V(x, y, z)=0,4\text{eV}$.	233
5.79	Korrugation ζ des He-MgO(001)-DFT-Potentials.	234
5.80	Axial gemittelttes He-MgO(001)-DFT-Potential.	236
5.81	Abschätzung des Korrekturfaktors für die Harte-Wand-Näherung für $\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{MgO}(001)$.	237
5.82	Beugungskarten für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$.	239
5.83	Beugungskarten für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{MgO}(001)$.	241
5.84	Literatur Rumpling MgO(001).	243
5.85	Intensitätsmodulation für verschiedene Rumpling-Werte δz für $0 \leq n \leq 3$ für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$.	245
5.86	Beste Anpassung des Rumplings von MgO(001).	246
5.87	Überzählige Regenbögen $\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$.	248
5.88	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_\perp)$ für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 100 \rangle \text{MgO}(001)$.	250
5.89	Doppel-Regenbogen bei $\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$.	251
5.90	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_\perp)$ für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$.	252
5.91	Intensitätsverteilungen für $\text{Ne} \rightarrow \text{MgO}(001)$.	255
5.92	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_\perp)$ für $\text{Ne} \rightarrow \text{MgO}(001)$ entlang $\langle 110 \rangle$ - und $\langle 100 \rangle$ -Richtung.	256
5.93	Interatomare Potentiale für Ne-Mg und Ne-O.	257
6.1	Beugungsmuster für $\text{He} \rightarrow \text{Ni}(110)$.	264
6.2	Vergleich Beugungslinien ${}^3\text{He}$ und ${}^4\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle \text{Ni}(110)$.	265
6.3	Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(\lambda_{\text{dB}\perp})$ für $\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle \text{Ni}(110)$.	266
6.4	Intensität der Beugungsmaxima für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle \text{Ni}(110)$.	267
6.5	Korrugation $\Delta z(E_\perp)$ für $\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle \text{Ni}(110)$.	268
6.6	Vergleich azimutale Halbwertsbreite der Beugungslinien für $\text{He} \rightarrow \text{Ni}(110)$, $\text{LiF}(001)$ und $c(1\times 3)\text{O}/\text{Ni}(110)$.	271
6.7	Regenbogenwinkel für ${}^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle, \langle 1\bar{1}2 \rangle \text{Ni}(110)$.	274
6.8	Interatomare Potentiale für He-Ni und Ne-Ni.	275
6.9	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_\perp)$ für $\text{Ne} \rightarrow \text{Ni}(110)$ entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - und $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung.	277
6.10	Regenbogenwinkel $\theta_{\text{rb}}(E_\perp)$ für $\text{Ar} \rightarrow \text{Ni}(110)$ entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - und $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung.	278
6.11	Interatomare Potentiale für Ar-Ni.	280
7.1	Strukturmodelle von $c(1\times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ und $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$.	284

7.2	LEED-Muster von $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	285
7.3	LEED-Muster von $c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$	286
7.4	Beugungsmuster bei Streuung von H_2 und He am sauberen $\text{Fe}(110)$ und an $c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$	287
7.5	Vergleich Beugungslinien ^3He und ^4He bei $E_0 = \text{konst}$ und bei $\lambda_{\text{dB}} = \text{konst}$ für $\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}1 \rangle c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$	289
7.6	Beugungsmuster für $^3\text{He} \rightarrow c(1 \times 3)\text{S}/$ und $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	290
7.7	Vergleich Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(\lambda_{\text{dB}})$ zwischen $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ und $c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$	291
7.8	Vergleich Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(\lambda_{\text{dB}})$ für verschiedene Gitterrichtungen von $c(1 \times 3)\text{S}/$ und $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	292
7.9	Projizierte Intensitätsverteilung $I(\theta)$ für $^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	294
7.10	Projizierte Intensitätsverteilung $I(\theta)$ für $^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}3 \rangle c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	295
7.11	Intensitätsmodulation $n = 0$ und 1 für $^3\text{He} \rightarrow c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(001)$ entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - und $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ sowie Korrugation $\Delta z(E_\perp)$	296
7.12	Projizierte Intensitätsverteilung $I(\theta)$ für $^3\text{He} \rightarrow c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang $\langle 001 \rangle$ - und $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung.	298
7.13	3D-Beugungskarte für $^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	299
7.14	Beugungskarten für $^3\text{He} \rightarrow c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	300
7.15	Projizierte Intensitätsverteilung $I(\Psi)$ für $^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$	302
7.16	Beugungsmuster bei azimuthaler Verdrehung.	303
7.17	He-Fe- und He-O-Potentiale.	305
7.18	Äquipotentiallinien des He- $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ -Potentials.	306
7.19	Vergleich Phasenunterschied in Harte-Wand-Näherung und Simulation mit „weichem“ Potential.	308
7.20	Korrugation $\Delta z(E_\perp)$ für He- $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	310
7.21	Ablenkwinkel $\theta(E_\perp)$ des klassischen und des Quanten-Regen- bogens für $^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$	312
7.22	Beugungskarte für $^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$	315
7.23	Überzählige Regenbögen für $\text{Ne} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$	317
7.24	Überzählige Regenbögen bei Streuung von He^+ -Ionen.	318
7.25	LEED-Muster von „ $(12 \times 16)\text{S}/\text{Fe}(110)$ “.	319
7.26	Projektionen der Intensität der LEED-Reflexe für sauberes $\text{Fe}(110)$ und „ $(12 \times 16)\text{S}/\text{Fe}(110)$ “.	320
7.27	Regenbogen-Triangulationskurven für „ $(12 \times 16)\text{S}/\text{Fe}(110)$ “ und unbedecktes $\text{Fe}(110)$	321
7.28	Beugungsmuster für H_2 und $^3\text{He} \rightarrow$ „ $(12 \times 16)\text{S}/\text{Fe}(110)$ “.	322
7.29	Vergleich Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(\lambda_{\text{dB}})$ für drei verschie- dene Überstrukturen auf $\text{Fe}(110)$	323
7.30	Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(\lambda_{\text{dB}})$ für verschiedene Gitterfüh- rungsrichtungen von „ $(12 \times 16)\text{S}/\text{Fe}(110)$ “.	324

Tabellenverzeichnis

2.1	Parameter für ZBL- und OCB-Potential.	13
5.1	Breiten der Gitterführungs Kanäle von LiF(001).	125
5.2	Parameter für He-Li- und He-F-Paarpotentiale.	156
5.3	Parameter für Ne-Li- und Ne-F-HF-Potentiale.	207
5.4	Breiten der Gitterführungs Kanäle von MgO(001).	219
5.5	Parameter für He-Mg- und He-O-HF-Potentiale.	232
5.6	Parameter für Ne-Mg- und Ne-O-HF-Potentiale.	257
6.1	Korrugation unterschiedlich offener Metalloberflächen.	262
6.2	Parameter für Edelgas-Ni-HF-Potentiale.	275
7.1	Breiten der Gitterführungs Kanäle bei c(1×3)S/Fe(110) und c(2×2)O/Fe(110).	292
7.2	Parameter für He-Fe- und He-O-HF-Potentiale.	304
7.3	Vertikale Position der adsorbierten O-Atome.	311
7.4	Breiten der Gitterführungs Kanäle von „(12×16)S/Fe(110)“. . .	325

Abkürzungen

2D, 3D	zweidimensional, dreidimensional
AES	Auger electron spectroscopy (Auger-Elektronen-Spektroskopie)
AFM	atomic force microscopy (Rasterkraftmikroskopie)
AG	Arbeitsgruppe
a.u.	atomic units (atomare Einheiten)
DFT	Dichtefunktionaltheorie
EP	Einbettungspotential
EZR	Elektron-Zyklotron-Resonanz
FAD	Fast Atom Diffraction (Beugung schneller Atome)
GIFAD	grazing incidence fast atom diffraction (Beugung schneller Atome)
GIXS	grazing incidence X-ray scattering (streifende Röntgenstreuung)
HAS	helium atom scattering (Beugung thermischer He-Atome)
HF	Hartree-Fock
IST	Ionenstrahl-Triangulation
LEED	low energy electron diffraction (Beugung niederenergetischer Elektronen)
MBE	molecular beam epitaxy (Molekularstrahlepitaxie)
MCP	microchannel plate (Mikrokanalplatte)
OCB	Wechselwirkungspotential von O'Connor und Biersack
RB	Regenbogen
SCF	self-consistent field (selbstkonsistentes Feld)
RHEED	reflection high-energy electron diffraction (Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen)
STM	scanning tunneling microscopy (Rastertunnelmikroskopie)
TF	Thomas-Fermi
TOF	time of flight (Flugzeit-Spektroskopie)
TEAS	thermal energy atom scattering (Beugung thermischer Atome)
UHV	Ultrahochvakuum
ZBL	Wechselwirkungspotential von Ziegler, Biersack und Littmark

Einführung und Grundlagen

Kapitel 1

Einleitung

"When we look at a rainbow, it looks beautiful to us. [...] But how would we describe a rainbow if we were blind? [...] Do we have enough imagination to see in the spectral curves the same beauty we see when we look directly at the rainbow?"

Richard P. Feynman [1]

Die Beugung massebehafteter Teilchen ist eine der eindrucksvollsten Manifestationen der Quantenphysik. Jedoch kann man solche Quanteninterferenz-Phänomene nicht direkt sehen, sondern nur mittels komplizierter Messvorrichtungen unter ganz bestimmten Bedingungen beobachten. Im Allgemeinen ist es schwierig sich vorzustellen, wie die Interferenz von Materiewellen zu einer bestimmten Beugungserscheinung führt. In dieser Arbeit werden Experimente zur Beugung schneller Atome und Moleküle an Oberflächen beschrieben (Fast Atom Diffraction, FAD), die so zuvor noch nie beobachtet wurden und zugleich eine sehr anschauliche Interpretation in Analogie zum atmosphärischen Regenbogen bei der Reflexion von Lichtwellen an Wassertropfen erlauben. Im Sinne des oben wiedergegebenen Zitats von Feynman ist die Frage, ob man in den in dieser Arbeit dargestellten Spektren der klassischen und quantenmechanischen Regenbögen bei der Streuung von Atomen an Oberflächen eine ähnliche Schönheit erkennt wie beim Betrachten des atmosphärischen Regenbogens, eine Frage der Vorstellungskraft.

Viele physikalische Effekte erscheinen nur deshalb in klassischer Form, weil die zugrundeliegende Quantisierung experimentell nicht aufgelöst werden kann bzw. der Kohärenzgrad zu gering ist. Der Quantencharakter offenbart sich jedoch, sobald die Messung genau genug ist und die Bedingungen so angepasst werden, dass die Kohärenz nicht zerstört wird. Nachdem de Broglie 1923 die Wellennatur der Materie postulierte [2, 3], gab es zahlreiche Versuche, das Phänomen experimentell zu beobachten. Im Jahre 1927 gelang es Davisson und Germer erstmals, die Beugung von Elektronen bei

der Streuung am Kristallgitter einer Ni(111)-Oberfläche nachzuweisen [4, 5]. Der im Jahr 1930 erschienene Bericht von Estermann und Stern [6] über den experimentellen Nachweis der Beugung von Molekularstrahlen aus langsamen („thermischen“) He-Atomen und H₂-Molekülen an einer LiF(001)- bzw. einer NaCl(001)-Oberfläche war ein weiterer Meilenstein bei der Etablierung der Quantentheorie und des Konzepts des Welle-Teilchen-Dualismus. De Broglie erhielt 1929 den Nobelpreis für Physik „für die Entdeckung der Wellennatur der Elektronen“, Davisson bekam den Nobelpreis 1937 „für die experimentelle Entdeckung der Beugung von Elektronen durch Kristalle“ und Stern erhielt den Nobelpreis 1943, unter anderem als Anerkennung „für seine Beiträge zur Entwicklung der Molekularstrahl-Methode“. Vor einigen Jahren wurde der Wellencharakter der Materie sogar mit C₆₀-Molekülen demonstriert [7].

Die Beugung von langsamen (10 bis 1000 eV) Elektronen (LEED) [8, 9] entwickelte sich zu einer der Standardmethoden bei der Untersuchung der Struktur von Oberflächen. Der größte Teil der bisher analysierten Oberflächenstrukturen basiert auf LEED-Experimenten [10]. Jedoch ist diese Methode für Isolatoroberflächen, die sich bei Bestrahlung mit Elektronen aufladen, ungeeignet. Auch Rastertunnelmikroskopie (STM) [11] ist nur an leitenden Oberflächen möglich. Daher sind die meisten bisher studierten Oberflächenstrukturen Überstrukturen auf einem Metallsubstrat [10, 12]. LEED-Untersuchungen können an Isolatoroberflächen nur mit einer speziellen Apparatur durchgeführt werden, die hocheffizient bei sehr geringen Strömen arbeiten kann [13]. In einzelnen Fällen ist es auch möglich, auf einer Metalloberfläche einen dünnen Film des jeweiligen Isolators epitaktisch aufzuwachsen, der dann eine für LEED-Untersuchungen ausreichende Leitfähigkeit aufweist [14]. Da bei der Analyse von LEED-Reflexen auch die Beiträge der Streuung an Atomen aus Lagen unter der obersten Atomlage sowie Mehrfachstreuung berücksichtigt werden müssen, ist die Beschreibung der relativen Intensität von LEED-Reflexen eine komplizierte Aufgabe mit vielen Parametern.

Die Beugung thermischer Atome (10 bis 100 meV) hat sich ebenfalls zu einem mächtigen Werkzeug zum Studium von Oberflächen entwickelt (TEAS, HAS) [15–20]. Aufgrund der neutralen Projektile stellen Aufladungseffekte hier kein Problem dar. Daher können mit dieser Methode auch Isolatoroberflächen untersucht werden. Eine Vielzahl geordneter Adsorbat-Überstrukturen auf Metall-, Halbleiter- und Isolatoroberflächen wurde mittels Beugung thermischer Atome untersucht. Eine Übersicht findet sich bei Farias und Rieder [20]. Ein weiterer Vorteil der Verwendung von Atomen statt Elektronen ist die höhere Oberflächensensitivität, da die Projektilatome nicht in den Festkörper eindringen. Die Beugung thermischer Atome ist andererseits experimentell sehr aufwendig. Zur Erzeugung eines thermischen Atomstrahls

wird Gas durch eine auf die Oberfläche gerichtete Düse in die Vakuumkammer eingelassen. Um das Vakuum aufrechterhalten zu können, sind hohe Pumpleistungen notwendig. Zur Detektion der gestreuten Atome wird ein beweglicher Ionisationsdetektor verwendet, mit dem man die entsprechenden Winkel schrittweise abfahren muss. Aufgrund der niedrigen Nachweiseffizienz bei der Detektion ist die Aufnahme eines Beugungsspektrums ein relativ langwieriger Prozess.

Um Beugungserscheinungen bei der Streuung von Licht an einem Beugungsgitter beobachten zu können, muss die Wellenlänge des Lichts mit der Gitterkonstante vergleichbar sein. Dementsprechend ist auch die Wellenlänge der Photonen bei der Beugung von Röntgenstrahlen am kristallinen Festkörper genauso wie die De-Broglie-Wellenlänge der Projektile bei LEED und HAS in der Größenordnung der Gitterkonstanten des Festkörpers (einige Å).

Bei der Streuung schneller Atome, d.h. bei kinetischen Energien von einigen keV, ist die zugeordnete De-Broglie-Wellenlänge ca. drei Größenordnungen kleiner als der Abstand der Atome im Kristallgitter. Sie ist damit auch deutlich kleiner als die mittlere thermische Auslenkung der Atome der Oberfläche (ca. $0,1 \text{ Å}$), kohärente Streuung scheint daher sehr unwahrscheinlich. Weiterhin gibt es bei diesen Energien während der Wechselwirkung zwischen Projektil und Oberfläche eine Vielzahl von möglichen Anregungsprozessen, welche die Kohärenz zerstören sollten. Beugungseffekte bei der Streuung von schnellen Atomen wurden daher bislang ausgeschlossen und auch nicht beobachtet. Die entsprechenden Projektil-Trajektorien wurden deshalb im Rahmen der klassischen Mechanik hinreichend genau beschrieben [21–23].

Es war daher sehr erstaunlich, dass sich in den Intensitätsverteilungen bei der Streuung von schnellen Atomen und Molekülen an LiF(001) deutliche Maxima zeigen, die nur im Sinne quantenmechanischer Beugung erklärt werden können [24, 25]. Unabhängig berichtete zeitgleich auch die von Roncin geleitete AG an der Université Paris-Sud von ähnliche Messungen an NaCl(001) und LiF(001) [26, 27], die diese Autoren in gleicher Weise interpretierten. Von solchen Beugungseffekten wurde zuvor noch nie berichtet. Die entsprechende De-Broglie-Wellenlänge ist dabei sogar um mehr als eine Größenordnung kleiner als das oben erwähnte Experiment zur Beugung von C₆₀-Fulleren-Molekülen [7].

Eine notwendige Bedingung für die Beugung schneller Atome ist die axiale Oberflächen-Gitterführung, d.h. die Streuung unter streifendem Einfallswinkel ($\approx 1^\circ$) entlang niedrig indizierter Richtungen des Kristallgitters der Oberfläche. Durch die Bewegung der Projektile parallel zu den Atomketten der obersten Atomlage und der damit verbundenen Mittelung über viele statistisch ausgelenkte Atome, wird die Kohärenz durch thermische Schwingungen deutlich weniger geschwächt als bei Streuung thermischer Atome unter senkrechtem Einfallswinkel [27, 28]. Eine Kühlung der Oberfläche wie

in vielen HAS-Experimenten ist daher nicht notwendig. Die Atomketten der Oberfläche wirken wie ein Beugungsgitter. Aufgrund der hohen experimentellen Auflösung können die einzelnen Beugungsmaxima getrennt werden. Bei Streuung an Isolatoroberflächen wie LiF(001) werden elektronische Anregungen durch die Bandlücke unterdrückt. Daher bleibt die Kohärenz erhalten und die Beugungsmuster sind hier besonders deutlich. Beugung schneller Atome ist jedoch auch an Metalloberflächen möglich [29–33], eine Bandlücke ist also keine notwendige Voraussetzung.

Um bei der Röntgenstreuung eine im Vergleich zum senkrechten Einfallswinkel höhere Oberflächensensitivität zu erreichen (10 bis 1000 Å), können die Röntgenquanten unter streifendem Einfallswinkel gestreut werden (GIXS) [34]. Auch zu LEED gibt es eine entsprechende Methode unter streifendem Einfallswinkel (RHEED) [35]. Hier wird unter anderem ausgenutzt, dass der Halbraum über der Oberfläche nicht durch die LEED-Apparatur blockiert wird, sodass Experimente mit Molekularstrahlepitaxie (MBE) zugleich mit der Aufnahme von RHEED-Beugungsmustern möglich sind. Die Elektronen müssen dabei eine im Vergleich zu LEED höhere Energie aufweisen. In diesem Sinne ist die Beugung schneller Atome bei streifendem Einfallswinkel die zur Beugung thermischer Atome bei senkrechtem Einfallswinkel korrespondierende Methode, genauso wie RHEED das Pendant zu LEED ist [36, 37]. Die Beugung schneller Atome (Fast Atom Diffraction) wird von der von Roncin geleiteten AG mit dem Akronym GIFAD (Grazing Incidence Fast Atom Diffraction) bezeichnet [27–29, 33, 36, 37].

Diese neue Technik hat einige Vorteile gegenüber anderen Beugungsmethoden. Dazu zählen unter anderem der gegenüber HAS sehr effiziente Nachweis der gestreuten Atome, der eine Aufnahme des kompletten Beugungsmusters in nur wenigen Minuten erlaubt. Weiterhin kann im Gegensatz zu HAS die De-Broglie-Wellenlänge in einem großen Bereich über die Projektilenergie variiert werden. Die Methode hat eine höhere Oberflächensensitivität als GIXS und LEED. Ein weiterer Vorteil ist die Möglichkeit, im Gegensatz zu konventionellem LEED, auch Isolatoroberflächen mit und ohne Adsorbat-Überstrukturen untersuchen zu können sowie die Anwendbarkeit bei Strukturen, die durch elektronenstimulierte Desorption verändert werden und daher mit LEED und RHEED nicht untersucht werden können. In den letzten Jahren erfuhr z.B. die Herstellung von Nanostrukturen aus organischen Molekülen auf Oberflächen wachsende Aufmerksamkeit [38, 39]. Solche Strukturen reagieren sehr sensibel auf Bestrahlung mit Elektronen. Die Beugung schneller Atome hätte hier einen entscheidenden Vorteil gegenüber der Elektronenbeugung. Außerdem sind die Beugungsmuster hier einfacher zu interpretierenden als bei den anderen Beugungsmethoden. Welch hohe Erwartungen an die neue Beugungsmethode geknüpft werden, ist daran zu erkennen, dass sich Khemliche *et al.* die Patentrechte für diese Technik

gesichert haben [40] und dass die ersten Veröffentlichungen [24, 26] innerhalb von zwei Jahren nach Erscheinen bereits über 20 Mal zitiert wurden. In unserer AG werden inzwischen an drei der vier betrieben Apparaturen Experimente zur Beugung schneller Atome durchgeführt.

Jede Methode zur Untersuchung von Oberflächen ist nur innerhalb bestimmter Grenzen anwendbar und keine ist frei von Unsicherheiten. STM [11] kann z.B. nur an leitenden Oberflächen angewandt werden und die Konturflächen des Abstands mit konstantem Tunnelstrom können zwar Details der Topographie der Oberfläche in atomarer Auflösungen offenbaren, jedoch ist die Interpretation solcher STM-Aufnahmen nicht immer einfach, da der Tunnelstrom von den Wellenfunktionen der Leitungselektronen der Tasterpitze und der Probe abhängt. Für zuverlässige Strukturaussagen sollten daher immer mehrere Untersuchungsmethoden ein konsistentes Bild liefern.

Die Kenntnis der Struktur der Oberfläche ist Voraussetzung für das Verständnis aller Oberflächenphänomene. Die Herstellung vieler Chemikalien erfolgt z.B. durch Reaktion an Festkörperoberflächen, wobei mindestens eine der an der Reaktion beteiligten Substanzen adsorbiert wird (heterogene Katalyse). Die Identifizierung der zugrundeliegenden Elementarprozesse an der Oberfläche ermöglicht die Entwicklung besserer Katalysatoren für die chemische Industrie. Ein anderes Beispiel stammt aus der Halbleiterindustrie. Bei der fortschreitenden Miniaturisierung stößt die Konstruktion von Halbleiterbauteilen auf der Basis von SiO_2 -Schichten als Isolator mittlerweile an die physikalischen Grenzen. Für integrierte Schaltungen mit noch höherer Dichte aktiver Bauelemente sind isolierende Schichten von atomarer Größenordnung notwendig. Dabei ist CaF_2 ein Kandidat, um SiO_2 als Isolatormaterial zu ersetzen. Jedoch werden CaF_2 -Schichten durch Elektronenstimulierte Desorption irreversibel geschädigt [41], sodass Elektronenbeugung zu deren Charakterisierung bei der Epitaxie nicht angewandt werden kann. Hier werden große Hoffnungen in die Beugung schneller Atome gesetzt [36].

Die Beugung schneller Atome erlaubt eine Bestimmung der Struktur der Oberfläche und der Form des Wechselwirkungspotentials zwischen dem Projektil und der Oberfläche. So wie die Lichtwege in einem Interferometer interferieren die Projektil-Trajektorien in Abhängigkeit der Form des Potentials und der De-Broglie-Wellenlänge konstruktiv oder destruktiv. Die intrinsische Genauigkeit bei der Bestimmung der Form des Potentials aus den resultierenden Beugungsmustern ist sehr hoch. Verschiedene sogenannte Ab-initio-Berechnungen des gleichen Potentials weichen z.T. relativ stark voneinander ab. Ein Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen ermöglicht eine Abschätzung der Qualität der jeweiligen Rechnung. Die semiklassische Beschreibung der Beugungseffekte ist eine sehr gute Näherung, die Grenzen der Anwendbarkeit werden in dieser Arbeit diskutiert. Um die Beugung schneller Atome als neue Methode zur Untersuchung von Oberflächen zu

etablieren, wurden für diese Arbeit verschiedene bereits mit anderen Methoden analysierte Oberflächen untersucht und die Ergebnisse miteinander verglichen. Das jeweilige Wechselwirkungspotential zwischen Projektil und Oberfläche wurde mit verschiedenen theoretischen Ansätzen berechnet und über den Vergleich mit dem Experiment das beste Modell ermittelt.

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert: Nach der Darstellung der theoretischen und experimentellen Grundlagen in Kap. 2 bzw. 3 werden in Kap. 4 die charakteristischen Merkmale der klassischen Regenbögen bei der Streuung verschiedener Projektilsorten an Metalloberflächen am Beispiel verschiedener Al-Flächen demonstriert. Kap. 5 beschreibt, wie die grundlegenden Eigenschaften der Beugung schneller Atome und der Quanten-Regenbögen bei Streuung an LiF(001) studiert wurden. Um zu zeigen, dass es sich dabei um allgemeine Prinzipien handelt, wurde mit MgO(001) eine weitere Isolator-Oberfläche untersucht. In Kap. 6 wird erörtert, unter welchen Bedingungen Beugung schneller Atome auch an Metalloberflächen möglich ist. Als Beispiel werden die Ergebnisse zur Beugung von He-Atomen an Ni(110) erläutert. In Kap. 7 wird anhand von zwei Adsorbat-Überstrukturen gezeigt, dass sich deren Strukturen aus den jeweiligen Beugungsmustern schneller Atome bestimmen lassen. Zusätzlich wird ein Beispiel dafür gegeben, dass aufgrund der unterschiedlichen Oberflächensensitivität die Interferenzmuster bei der Beugung schneller Atome andere Informationen enthalten können als die LEED-Muster. Im experimentellen Teil der Arbeit werden die Ergebnisse jeweils am Ende jedes Abschnitts kurz zusammengefasst. Einige der in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse wurden bereits in internationalen Fachzeitschriften publiziert¹ (Publikationsliste des Autors auf Seite 373).

Die vorliegende Arbeit wurde am Lehrstuhl „Physik der Grenzflächen und dünnen Schichten“ am Institut für Physik der Humboldt-Universität zu Berlin unter Leitung von Prof. Dr. Helmut Winter realisiert. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft hat die Vorhaben im Rahmen des Projekts Wi 1336 finanziell unterstützt. Der Autor wurde zudem durch die International Max Planck Research School „Complex Surfaces in Materials Science“ (IMPRS-CS) des Fritz-Haber-Instituts der Max-Planck-Gesellschaft gefördert.

¹Dazu zählen Auszüge aus Kap. 4 in den Veröffentlichungen Nr. 4 und 14, aus Kap. 5 in den Veröffentlichungen Nr. 5, 8, 9, 10 und 16, aus Kap. 6 in Nr. 11 sowie aus Kap. 7 in Nr. 10, 12, 13 und 15 aus der Publikationsliste des Autors.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

2.1 Wechselwirkungspotentiale

Die Streuung von Atomen an Oberflächen wird durch das Wechselwirkungspotential zwischen dem Projektilatom und der Oberfläche bestimmt, welches sich wiederum auf die interatomare Wechselwirkung zwischen dem Projektilatom und jedem einzelnen Atom der Oberfläche zurückführen lässt. Um die in dieser Arbeit vorgestellten experimentellen Ergebnisse interpretieren zu können, ist daher die Beschreibung der jeweils zugrundeliegenden Potentiale von entscheidender Bedeutung. In den folgenden Abschnitten werden die in der Arbeit verwendeten Näherungen für interatomare Potentiale vorgestellt und die Ansätze für Projektil-Oberfläche-Potentiale erläutert.

2.1.1 Interatomare Paar-Potentiale

Das Wechselwirkungspotential zwischen zwei Atomen mit den Kernladungszahlen Z_1 und Z_2 wird bei geringem Abstand ($r \ll 1$ a.u.) durch die Coulomb-Abstoßung der beiden Kerne dominiert (Rutherford-Streuung), sodass (in a.u.)

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} \quad (2.1)$$

Ist der Abstand zwischen den Atomen hingegen groß gegenüber der Ausdehnung der Elektronenhülle ($r \gtrsim 10$ a.u.), wird das Feld der Kernladung von den Elektronen abgeschirmt und es wirkt keine Kraft zwischen den beiden neutralen Atomen. Kommen die Atome bei einem Stoß jedoch so dicht zusammen, dass sich deren Elektronenhüllen durchdringen, dann können nur die Elektronen der inneren Schalen das Feld der Kerne effektiv abschirmen. Es ist daher zweckmäßig, das Potential in diesem Abstandsbereich als sogenanntes geschirmtes Coulomb-Potential durch

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} f(r) \quad (2.2)$$

zu beschreiben. Dabei ist die Abschirmfunktion $f(r)$ das Verhältnis des tatsächlichen Potentials in einem Abstand r zum Coulomb-Potential der ungeschirmten Kerne. Für große r muss $f(r)$ gegen 0 konvergieren und für $r \rightarrow 0$ gegen 1 laufen. Je größer der Abstand der Atome, desto mehr wird das Potential durch die Coulomb-Kräfte zwischen den Elektronen der beiden Atome und deren Abstoßung aufgrund des Pauli-Prinzips dominiert. Auch wenn in diesem Bereich das Coulomb-Potential zwischen den Kernen kaum noch beiträgt, kann $V(r)$ durch Gl. (2.2) mit einer adäquaten Funktion $f(r)$ beschrieben werden.

Eine Näherung für die Abschirmfunktion $f(r)$ kann aus dem quasiklassischen Thomas-Fermi-Modell (TF) abgeleitet werden [42]. Die TF-Näherung erlaubt eine einfache Abschätzung der Ladungsdichte eines Mehrelektronen-Systems. Dabei werden die Elektronen des Atoms wie Teilchen eines idealen Gases behandelt, deren kinetische Energien der Fermi-Dirac-Statistik folgend alle erlaubten Energie-Zustände im Potential-Trichter um den Z -fach positiv geladenen Kern bis zur Fermi-Energie besetzen. Aus der Ladungsdichte im Abstand r zum Atomkern ergibt sich das Potential einer Punktladung bei r zu (in a.u.)

$$V(r) = \frac{Z}{r} f(r/a_{\text{TF}}) \quad (2.3)$$

mit der TF-Abschirmlänge

$$a_{\text{TF}} = \frac{1}{4} \left(\frac{9\pi^2}{2} \right)^{1/3} \frac{1}{Z^{1/3}} = \frac{0,8853}{Z^{1/3}} \quad (2.4)$$

wobei die Abschirmfunktion $f(r/a_{\text{TF}} = x)$ die Differentialgleichung

$$f''(x) = f(x)^{3/2}/\sqrt{x} \quad (2.5)$$

erfüllen muss. Für diese nur numerisch lösbare Differentialgleichung schlug Molière [43] die analytische Näherung

$$f(x) = 7p \exp(-qx) + 11p \exp(-4qx) + 2p \exp(-20qx) \quad (2.6)$$

mit $p = 0,05$ und $q = 0,3$ vor. Eine Übersicht über weitere Ansätze findet sich in Ref. [42].

Firsov [44] leitete aus der Überlappung der Elektronendichte zweier TF-Atome mit den Kernladungszahlen Z_1 und Z_2 das interatomare Potential

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} f\left(\frac{r}{\hat{a}_{\text{TF}}}\right) \quad (2.7)$$

ab, wobei die Abschirmlänge $\hat{a}_{\text{TF}} = a_{\text{F}} = 0,8853/Z_{\text{eff}}^{1/3}$ von der effektiven Ladung der beiden Atome $Z_{\text{eff}} = (\sqrt{Z_1} + \sqrt{Z_2})^2$ bestimmt wird, sodass

$$a_{\text{F}} = 0,8853 / \left(\sqrt{Z_1} + \sqrt{Z_2} \right)^{2/3} \quad (2.8)$$

Lindhard *et al.* [45] schlug mit $\hat{a}_{\text{TF}} = a_{\text{L}} = 0,8853 / \sqrt{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})}$ eine ähnliche Abschirmlänge vor. Im Weiteren wird das Potential Gl. (2.7) mit Firsovscher Abschirmlänge Gl. (2.8) und der sich aus Molières Lösung von Gl. (2.5) ergebenden Abschirmfunktion Gl. (2.6) Molière-Potential genannt. Das Molière-Potential gehört zu den generalisierten Potentialen, d.h. es ist eine analytische Funktion, die nur von den Kernladungszahlen abhängt und für alle Kombinationen Z_1 und Z_2 gültig ist.

Es gibt keine strenge Rechtfertigung für die Firsovsche oder die Lindhardsche Abschirmlänge [23]. Sie kann als in einem bestimmten Maße variabler Parameter betrachtet werden [46, 47]. Zur Beschreibung der Streuung von Atomen und Ionen an Oberflächen muss a_{F} je nach Projektil-Sorte und Oberfläche mit einem Faktor C zwischen 0,4 und 0,95 multipliziert werden, um eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen zu erzielen [46–48]. O'Connor und Biersack [49] haben eine Vielzahl von experimentell abgeleiteten Paarpotentialen für verschiedene Atom-Kombinationen mit dem Molière-Potential verglichen. Dabei zeigte sich eine systematische Abweichung der empirischen Potentiale im Energiebereich $V(r) < 10 \text{ eV}$. Die mittlere Abweichung wird durch Skalierung der Abschirmlänge a_{F} mit

$$C = 0,54 + 0,045(\sqrt{Z_1} + \sqrt{Z_2}) \quad (2.9)$$

verringert [49, 50]. Für die Wechselwirkung zwischen schweren Atomen kann der Korrekturfaktor damit sogar $C > 1$ sein. Im Weiteren wird das Molière-Potential mit der nach Gl. (2.9) empirisch korrigierten Firsovschen Abschirmlänge Ca_{F} als OCB-Potential bezeichnet. Da Gl. (2.9) nur von Z_1 und Z_2 abhängt, ist auch das OCB-Potential ein generalisiertes Potential.

Im Thomas-Fermi-Modell ist die kinetische Energie der Elektronen und die Coulomb-Energie zwischen dem Kern und den Elektronen sowie zwischen den Elektronen untereinander berücksichtigt. Die Austauschenergie wird in diesem Modell jedoch vernachlässigt. Diese resultiert aus der quantenmechanischen Symmetrieforderung, dass Fermionen eine antisymmetrische Wellenfunktion aufweisen müssen. Sie korrespondiert also nicht zu einer physikalischen Wechselwirkung, sondern ist der Unterschied zwischen der quasiklassischen und der quantenmechanischen Beschreibung.

Abrahamson *et al.* [51, 52] berücksichtigten bei der Berechnung der Potentiale zwischen TF-Atomen auch die Austauschenergie. Für die Wechselwirkung zwischen gleichen Atomen der Kernladung $Z = 2$ bis $Z = 105$ verlaufen die Potentiale in der logarithmischen Darstellung in einem großen Abstandsbereich fast geradlinig. Daher reicht die tabellarische Angabe von jeweils zwei Parametern A und b in Ref. [52], um alle Potentiale in Born-Mayer-Form

$$V(r) = A \exp(-br) \quad (2.10)$$

anzugeben. Das Potential für ungleiche Atompaare $Z_1 \neq Z_2$ ergibt sich näherungsweise aus $V(r) = \sqrt{A_1 A_2} \exp(-(b_1 + b_2)r)$. Doch trotz der Berücksichtigung

sichtigung der Austauschenergie sind die Rechnungen von Abrahamson nicht genauer als das Molière-Potential mit Firsovscher Abschirmlänge [53].

Die Elektronendichte fällt im TF-Modell unabhängig von der Schalenstruktur des Atoms monoton mit dem Abstand r . Ein realistischeres Modell liefern Elektronendichte-Verteilungen aus Hartree-Fock-Rechnungen (HF). Hier wechseln, in Abhängigkeit der jeweiligen Schalenstruktur, Bereiche hoher und niedrigerer Elektronendichte. Atome, deren Kernladungszahlen sich nur wenig unterscheiden, können daher bei bestimmten Abständen r sehr unterschiedliche Abschirmungen aufweisen. Ein individuell für die jeweils beiden wechselwirkenden Atome mit dem HF-Verfahren berechnetes Potential kann die daraus resultierenden Unterschiede wiedergeben [54]. Im Weiteren werden die auf diese Weise berechneten Potentiale HF-Potentiale genannt.

Die in dieser Arbeit verwendeten HF-Potentiale wurden von Gärtner [54, 55] mit dem Programm IND POT berechnet. Die Rechnungen basieren auf Elektronendichte-Verteilungen freier Atome, die aus HF-Wellenfunktionen von Clementi and Roetti [56] abgeleitet wurden. Dabei wird angenommen, dass sich die Elektronendichte-Verteilungen der beiden Atome ohne eine Deformation durchdringen. Diese Näherung wird bei schweren Atomen mit vielen Elektronenschalen schlechter. Die potentielle Energie zweier Atome ergibt sich aus

$$V(r) = V_{\text{es}}(r) + V_{\text{k}}(r) + V_{\text{A}}(r) \quad (2.11)$$

wobei die elektrostatische Energie V_{es} die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den beiden Kernladungen, den Kernen und den Elektronen sowie den Elektronen untereinander repräsentiert. V_{k} berücksichtigt die Erhöhung der kinetischen Energie der Elektronen im Bereich der überlappenden Elektronendichte-Verteilungen aufgrund des Pauli-Prinzips, und V_{A} ist die Austauschenergie.

Konkrete Rechnungen mit dem HF-Verfahren sind aufwendig. Es kann auch eine sogenannte selbstkonsistente (SCF) Lösung bestimmt werden. Diese wird iterativ ermittelt, da der Verlauf des effektiven Atompotentials einerseits die Wellenfunktionen der Elektronen bestimmt und andererseits von diesen abhängt.

Ziegler, Biersack und Littmark (ZBL) [57] berechneten für 261 zufällig gewählte Atompaar-Kombinationen das jeweilige HF-Potential. Werden die zugehörigen Abschirmfunktionen über den mit der Firsovchen Abschirmlänge skalierten Abstand $r/a_{\text{F}}(Z_1, Z_2)$ aufgetragen, dann liegen sie zwar weitestgehend übereinander, eine bessere Übereinstimmung ergab sich aber nach Anpassung der sogenannten universalen Abschirmlänge

$$a_{\text{u}} = \frac{0,8853}{Z_1^{0,23} + Z_2^{0,23}} \quad (2.12)$$

Um ein generalisiertes Potential zu erhalten, wurde an die über alle Kurven

Tab. 2.1: Parameter für die Abschirmfunktion des ZBL- und des Molière- bzw. OCB-Potentials.

	i	1	2	3	4
ZBL	a_i	0,1818	0,5099	0,2802	0,02817
	b_i	3,2	0,9423	0,4028	0,2016
Molière/ OCB	a_i	0,35	0,55	0,1	0
	b_i	0,3	1,2	6	

gemittelte universale Abschirmfunktion die Funktion

$$f(r/a_u) = \sum_{i=1}^4 a_i \exp(-b_i r/a_u) \quad (2.13)$$

angepasst, deren Parameter a_i und b_i in Tab. 2.1 angegeben sind. Die Entsprechenden Parameter für die Abschirmfunktion von Molière nach Gl. (2.6) sind ebenfalls angegeben.

Das Potential nach Gl. (2.2) mit der Abschirmfunktion Gl. (2.13) und der Abschirmlänge Gl. (2.12) wird ZBL-Potential oder auch „universales“ Potential genannt. Es sollte aber besser „gemitteltes“ Potential heißen [23], da die universale Abschirmfunktion nur im Mittel mit der jeweiligen Abschirmfunktion aus der individuellen HF-Rechnung übereinstimmt und weil sie die Variationen aufgrund der Schalenstruktur der Atome nicht wiedergeben kann. Das ZBL-Potential wurde ursprünglich zur Berechnung der Reichweiten von Ionen bei der Implantation in den Festkörper entwickelt [57]. Deshalb wurde bei der Anpassung von Gl. (2.13) besonderes Gewicht auf den hierbei relevanten Energiebereich $V > 100$ eV gelegt. Dennoch wird bei der Beschreibung der streifenden Streuung von Ionen und Atomen an Oberflächen, für die der Energiebereich $V < 100$ eV relevant ist, häufig das ZBL-Potential verwendet, wie z.B. in Ref. [21, 58–62]. Daher wurde in dieser Arbeit auch das ZBL-Potential betrachtet.

Sowohl ZBL- als auch Molière- bzw. OCB-Potential lassen sich also durch

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} \sum_i a_i \exp(-b_i r/a_s) \quad (2.14)$$

mit den Parametern aus Tab. 2.1 angeben, wobei a_s die jeweilige Abschirmlänge a_u , a_F bzw. $C a_F$ ist¹.

Im Energiebereich $V(r) < 1$ eV sind die langreichweitigen anziehenden Beiträge zum interatomaren Potential nicht mehr vernachlässigbar. Für die in dieser Arbeit vorgestellten Beugungsexperimente an Ionenkristallen sind insbesondere die Potentiale zwischen Atomen und Ionen relevant. Hier müssen neben den Van-der-Waals-Kräften auch die anziehenden Kräfte aufgrund der Polarisierung des Atoms im Feld des Ions berücksichtigt werden. Ahlrichs

¹Für die in der Arbeit an entsprechender Stelle angegebenen Parameter a_i und b_i für Anpassungen an HF-Potentiale ist $a_s = 1$.

et al. [63] haben ein Potential für die Wechselwirkung zwischen Edelgas-Atomen und Halogen- bzw. Alkali-Ionen auf Basis von SCF-Rechnungen entwickelt, das auch den Bereich kleiner Energien und den Bereich mit $V(r) < 0$ beschreibt. Es ist gegeben durch

$$V(r) = 1,31 A \exp(-br) - \sum_{n=2}^5 f_{2n}(r) \frac{D_{2n}}{r^{2n}} \quad (2.15)$$

mit $D_4 = \alpha_1/2$, $D_6 = \alpha_2/2 + C_6$, $D_8 = \alpha_3/2 + C_8$ und $D_{10} = \alpha_4/2 + C_{10}$ und

$$f_{2n}(r) = 1 - \exp(-br) \sum_{k=0}^{2n} \frac{(br)^k}{k!} \quad (2.16)$$

Dabei ist α_1 die Dipol-Polarisierbarkeit des Edelgas-Atoms, α_2 die Quadrupol-Polarisierbarkeit usw. Die sogenannten Dispersionskonstanten C_6 , C_8 und C_{10} geben die Van-der-Waals-Wechselwirkung zwischen dem Edelgas-Atom und dem jeweiligen Halogen- bzw. Alkali-Ion wieder. A und b sind die Born-Mayer-Parameter aus der Anpassung an die jeweilige SCF-Rechnung der Abstoßung aus der Überlappung der Elektronenwolken des Edelgas-Atoms und des Ions.

Prinzipiell lassen sich Paarpotentiale auch mit der Dichtefunktionaltheorie (DFT) berechnen [64]. Dazu wird die Gesamtenergie eines Systems aus zwei Atomen für verschiedene Abstände r z.B. mit dem DFT-Programm ABINIT [65] bestimmt. Aus der Änderung der Gesamtenergie ergibt sich dann das Potential. Die eigentliche Stärke der DFT-Theorie liegt aber in der Fähigkeit, das ganze System aus Oberfläche und Projektilatom beschreiben zu können. Das eigentliche Ziel, ein Projektilatom-Oberfläche-Potential zu berechnen, kann mittels DFT also ohne den Umweg über Paarpotentiale und den damit verbundenen Näherungen erreicht werden. Diese Näherungen bei der Konstruktion eines Projektilatom-Oberfläche-Potentials werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

2.1.2 Das Potential zwischen Projektil und Oberfläche

Zur Beschreibung der Bewegung von Ionen im Festkörper mit Energien im Bereich > 100 keV können die im vorherigen Abschnitt beschriebenen interatomaren Paarpotentiale gitterperiodisch addiert werden, um ein adäquates Potential $V(x, y, z)$ zu erhalten [57]. Computersimulationen mit einem derart aufgebauten Potential können die Reichweiten von Projektilen in Festkörpern gut beschreiben. Bei der Streuung von Atomen an Oberflächen mit Projektilenergien im Bereich von einigen 100 eV bis einigen keV unter großem Einfallswinkel kann das Projektil-Oberfläche-Potential ebenfalls durch eine Superposition von Paarpotentialen beschrieben werden [22]. Daher wurde auch zur Beschreibung der streifenden Streuung schneller Atome an Oberflächen bisher meist dieses Modell verwendet [21], obwohl hier die relevante

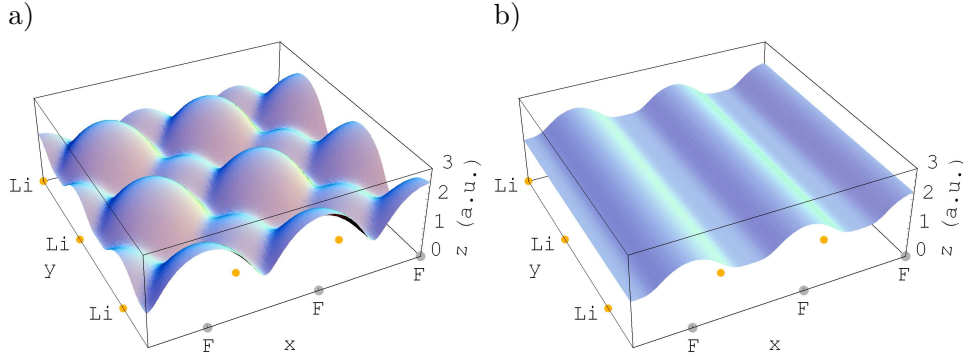


Abb. 2.1: **a)** Äquipotentialfläche $V(x, y, z) = 3 \text{ eV}$ des Wechselwirkungspotentials zwischen einem He-Atom und LiF(001) aus der Superposition von HF-Paarpotentialen. Die Positionen der F- und der Li-Gitterplätze sind grau bzw. gelb markiert. **b)** Äquipotentialfläche des effektiven Potentials bei axialer Oberflächen-Gitterführung: wie a), jedoch nach axialer Mittelung entlang $y = \langle 110 \rangle$.

Senkrechtenergie E_{\perp} im Bereich von etwa 0,1 eV bis 100 eV liegt. Ein Potential aus der Superposition von Paarpotentialen hat die Form

$$V(x, y, z) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{k=-\infty}^{\infty} \sum_{j=-\infty}^{\infty} V(r_{lkj}) \quad (2.17)$$

wobei $V(r_{lkj})$ das Paarpotential und r_{lkj} der Abstand zwischen Projektilatom und dem Atom j der Atomkette k der Atomlage l der Oberfläche ist. Bei der Summation dürfen nur die Atome berücksichtigt werden, bei denen r_{lkj} noch im Gültigkeitsbereich des verwendeten Potentials liegt. Zur Veranschaulichung ist in Abb. 2.1a die Äquipotentialfläche für $V(x, y, z) = 3 \text{ eV}$ des Potentials aus der Superposition von HF-Paarpotentialen (Abschn. 5.1.5.2) nach Gl. (2.17) für die Wechselwirkung eines He-Atoms mit einer LiF(001)-Oberfläche gezeigt. In Harte-Wand-Näherung werden He-Atom mit einer kinetischen Energie von 3 eV an dieser Fläche reflektiert. Tatsächlich wird das Projektil aber bereits abgelenkt, wenn es das Potential $V(x, y, z) < 3 \text{ eV}$ durchläuft, sodass sich die Ablenkungswinkel in Harte-Wand-Näherung von den mit dem „weichen“ Potential berechneten unterscheiden.

Bei der Superposition von Paarpotentialen wird die Oberfläche als eine Anordnung von ungestörten freien Atomen beschrieben, Einflüsse des Festkörpers und der Oberfläche werden vernachlässigt. Insbesondere bei Metallen mit ihren quasifreien Elektronen ist dies jedoch keine gute Näherung. Der Einfluss des freien Elektronengases muss hier berücksichtigt werden.

Bei der Streuung von thermischen Atomen an Metalloberflächen ist die Wechselwirkung mit dem Elektronengas so dominant, dass die geschirmten Coulomb-Potentiale ganz vernachlässigt werden können. Esbjerg und Nørskov [66] haben gezeigt, dass bei thermischen Energien das abstoßende Potential zwischen einem He-Atom und einer Metalloberfläche linear von der

ungestörten Dichte der Valenzelektronen n_0 abhängt. Für Edelgas-Atome ergibt sich das Potential zu

$$V(x, y, z) = \beta n_0(x, y, z) \quad (2.18)$$

wobei β eine für das jeweilige Edelgas spezifische Konstante² ist [67]. Dieser Ansatz wird zur Interpretation von experimentellen Ergebnissen bei der Streuung thermischer Atome häufig verwendet, wie z.B. in Ref. [18–20, 68–84]. Für He-Cu(110) ergab sich eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und den HAS-Experimenten [80, 83]. Bei anderen Systemen musste β angepasst werden [80, 85]. Bei der Streuung an Ni-Oberflächen war der angepasste Wert für β nicht einmal von einer kristallografischen Fläche auf eine andere übertragbar [68, 86]. Die HAS-Daten aus der Streuung an Ni(110) sind mit Gl. (2.18) bei Verwendung der genauen Elektronendichte $n_0(x, y, z)$ [82] nicht erklärbar [80]. Auch die Unterschiede zwischen He und Ne bei der Streuung an Ni(110) und Pd(110) [73] sowie Rh(110) [79] stehen im Widerspruch zum Verhältnis der theoretischen β -Werte von He und Ne. Petersen *et al.* [87] haben das Potential zwischen He- bzw. Ne-Atomen und Rh(110) mittels DFT berechnet und gezeigt, dass die Wechselwirkung mit Metalloberflächen deutlich komplizierter sein kann als der Ansatz nach Gl. (2.18).

Der für die streifende Streuung schneller Atome relevante Energiebereich befindet sich zwischen dem Bereich thermischer Energien $V < 100$ meV, bei dem die geschirmten Coulomb-Potentiale vernachlässigt werden, und dem Bereich $V > 100$ eV, bei dem die Superposition von Paarpotentialen eine gute Näherung ist. Zur Beschreibung der Streuung an Oberflächen mit Energien von einigen eV kann das Potential aus Beiträgen der Superposition von Paarpotentialen und der Wechselwirkung des Projektils mit dem Elektronengas zusammengesetzt werden [88, 89]. Bei welchen Projektil-Oberfläche-Systemen Potentiale aus der Superposition von Paarpotentialen die streifende Streuung schneller Atome beschreiben können und ob Van-der-Waals-Kräfte oder andere Beiträge wie die Wechselwirkung mit dem Elektronengas berücksichtigt werden müssen, ist eines der Themen dieser Arbeit und wird an den entsprechenden Stellen ausführlich diskutiert.

Bei der Streuung von geladenen Projektilen an Oberflächen trägt das Bildladungspotential entscheidend zur Wechselwirkung zwischen Ion und Oberfläche bei [90–92]. Um diesen Beitrag auszuschließen, wurden in dieser Arbeit weitgehend neutrale Atome als Projektile verwendet. In den anderen Fällen wurde das Bildladungspotential bei der Auswertung berücksichtigt.

²Man beachte: Der β -Wert für He in der ersten Veröffentlichung Ref. [66] ist falsch [67].

2.2 Oberflächen-Gitterführung

Die charakteristische Eigenschaft jedes Kristalls ist die geordnete und symmetrische Anordnung seiner Atome. Für die Beschreibung einer Richtung im Kristallgitter werden eine gerade Linie durch den Koordinatenursprung und ein Gitteratom genommen, dessen Koordinaten $[hkl]$ die Indizes dieser Richtung sind. Die Gruppe von symmetrisch äquivalenten Richtungen wird mit $\langle hkl \rangle$ bezeichnet. Aufgrund der Symmetrie des Kristallgitters liegen die Gitterpunkte auf einer Geraden immer äquidistant entfernt. Für Kristall-Richtungen mit niedrigen Indizes liegen die Gitterpunkte (die Atome der entsprechenden Atomkette) dicht zusammen. Der Abstand benachbarter Atomketten d ist umso größer, je geringer der Abstand der Atome in der Kette a ist, da die Atomdichte der Oberfläche $n_s = 1/(da)$ eine Konstante ist. Die niedrig-indizierten Richtungen werden auch Hauptrichtungen genannt.

Bei der Implantation von Ionen in kristalline Festkörper ergeben sich für kleine Einfallswinkel bezüglich kristallografischer Hauptrichtungen ungewöhnlich hohe Reichweiten. Dieses Phänomen nennt man Gitterführung (channeling) [93–96]. Dichtgepackte Atomketten bzw. Atomebenen bilden dabei Kanäle, an deren Wänden ein Projektil, das unter kleinem Einfallswinkel bezüglich der Kanalrichtung einfällt, abgelenkt und innerhalb des Kanals auf eine oszillierende Bahn gezwungen wird. Da es zu keinen binären Stößen zwischen Projektil und den Atomen des Kristalls kommt, können gittergeführte Projektile sehr weit in den Festkörper eindringen. Je nachdem, ob ein Projektil in seiner Bewegung auf das Gebiet zwischen zwei dichtgepackten Atomebenen oder auf den Kanal zwischen mehr als zwei Atomketten beschränkt ist, unterscheidet man zwischen planarer und axialer Gitterführung. Die streifende Streuung von Atomen an einer Oberfläche unter flachem Einfallswinkel ist ein Spezialfall der planaren Gitterführung an einer Atomebene, bei dem eine zweite begrenzende Ebene fehlt [21]. Analog kann die Streuung entlang dichtgepackter Atomketten der Oberfläche als axiale Gitterführung in einem halboffenen Kanal betrachtet werden [97–100]. Man nennt diese Regime planare bzw. axiale Oberflächen-Gitterführung.

In den folgenden Abschnitten werden die Geometrie für axiale Oberflächen-Gitterführung und die Näherungen für die effektiven Potentiale der Wechselwirkung von Projektilen mit Atomketten bzw. Ebenen erläutert.

2.2.1 Streugeometrie

In Abb. 2.2 ist die Geometrie der streifenden Streuung skizziert. Der Einfallswinkel Φ_{in} des einlaufenden Atomstrahls bezüglich der Oberflächebene liegt im Bereich $0,5^\circ < \Phi_{\text{in}} < 2,5^\circ$. Der Geschwindigkeitsvektor des einlaufenden Projektils kann in eine zur Oberfläche parallele und senkrechte Komponente zerlegt werden. Aus der Senkrechtkomponente ergibt sich die

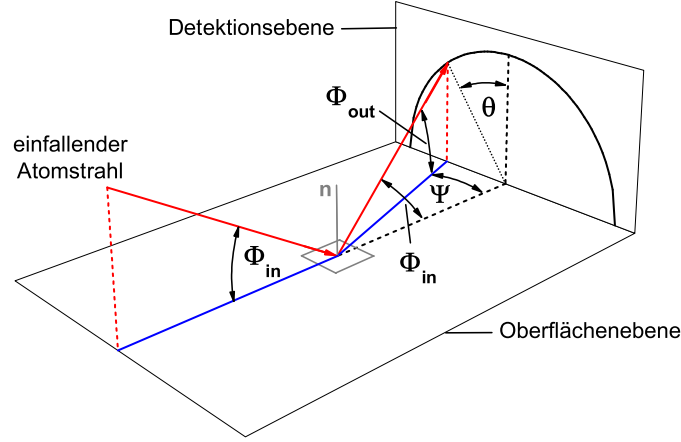


Abb. 2.2: Geometrie der streifenden Streuung. Die Oberflächennormale \vec{n} , spannt zusammen mit der Achse des einfallenden Atomstrahls die Einfallsebene auf. Der Einfallswinkel Φ_{in} bezieht sich auf die Oberflächenebene. Elastisch gestreute Projektile treffen die Detektionsebene auf einem Kreis mit Radius Φ_{in} . Der Ablenkwinkel θ (in der Detektionsebene) des gestreuten Projektils bezüglich der Einfallsebene ergibt sich aus dem azimutalen Austrittswinkel Ψ (in der Oberflächenebene) und dem polaren Austrittswinkel Φ_{out} .

kinetische Energie der Bewegung senkrecht zur Oberfläche zu

$$E_{\perp} = E_0 \sin^2 \Phi_{\text{in}} \quad (2.19)$$

wobei E_0 die kinetische Gesamtenergie des Projektils ist. E_{\perp} wird im Weiteren Senkrechtenergie und E_0 Projektilenergie genannt. Für $\Phi_{\text{in}} \approx 1^\circ$ ergibt sich $E_{\perp} = 3 \times 10^{-4} E_0$. Für Projektilenergien E_0 im Bereich von einigen keV beträgt die Senkrechtenergie E_{\perp} also nur einige eV. Die kinetische Energie parallel zur Oberfläche ist entsprechend $E_{\parallel} = \cos^2 \phi_{\text{in}} \approx E_0$. Die schnelle Bewegung des Projektils parallel zur Oberfläche und die langsame senkrechte Bewegung sind fast vollständig voneinander entkoppelt.

Die Achse des einfallenden Atomstrahls und die Oberflächennormale \vec{n} spannen zusammen die Einfallsebene auf. Bei elastischer Streuung ist der Betrag des Geschwindigkeitsvektors des Projektils nach der Reflexion von der Oberfläche so groß wie zuvor. Dabei ändert sich bei der streifenden Streuung die Komponente parallel zur Oberfläche nicht, während kinetische Energie aus der Bewegung senkrecht zur Oberfläche in eine Bewegung senkrecht zur Einfallsebene überführt wird, wenn das Projektil von den Atomketten der Oberfläche abgelenkt wird. Damit liegt die auslaufende Trajektorie in einer zur Einfallsebene um den Ablenkwinkel θ geneigten Ebene. Der Winkel der auslaufenden Trajektorie zur Schnittgeraden dieser Ebene mit der Oberflächenebene entspricht Φ_{in} . Die elastisch gestreuten Projektile treffen daher die Detektionsebene auf einem Halbkreis, dessen Radius durch den Einfallswinkel Φ_{in} bestimmt wird und dessen Ursprung am Schnittpunkt zwischen

Oberflächenebene, Einfallsebene und Detektionsebene liegt. In Abb. 2.2 ist der entsprechende Halbkreis in der Detektionsebene eingezeichnet. Der Ablenkwinkel θ eines gestreuten Projektils ergibt sich aus dem azimutalen Austrittswinkel Ψ in der Oberflächenebene und dem polaren Austrittswinkel bezüglich der Oberflächenebene Φ_{out} zu

$$\theta = \arctan\left(\frac{\Psi}{\Phi_{\text{out}}}\right) \quad (2.20)$$

bzw. aus Ψ und Φ_{in} zu

$$\theta = \arcsin\left(\frac{\tan \Psi}{\tan \Phi_{\text{in}}}\right) \approx \arcsin\left(\frac{\Psi}{\Phi_{\text{in}}}\right) \quad (2.21)$$

$$\approx \arcsin\left(\frac{\sin \Psi}{\sin \Phi_{\text{in}}}\right) \quad (2.22)$$

Diese Überlegungen gelten für elastische Streuung. Bei der streifenden Streuung schneller Atome ist diese Voraussetzung erfüllt. Den sogenannten nuklearen Energieverlust, d.h. einen Energieübertrag durch binäre Stöße zwischen Projektil und den Atomen der Oberfläche gibt es hier faktisch nicht [62], der Rückstoß der Atome der Oberfläche (recoil) ist vernachlässigbar gering [98, 101]. Der dominante Energieverlust wird durch elektronische Anregungen der Oberfläche bei binären Stößen des Projektils mit Elektronen verursacht [102]. Man beobachtet eine für die Streugeometrie vernachlässigbare Verringerung der Projektilenergie von 0,1 Promille [62] bis zu ein paar Prozent [103, 104]. Die Senkrechtenergie ist von diesen inelastischen Wechselwirkungen entkoppelt [105].

Ist der azimutale Einfallswinkel γ_{in} zwischen Einfallsebene und den niedrig indizierten Gitterrichtungen in der Oberfläche groß genug, dann werden die Projektile unter planarer Oberflächen-Gitterführung gestreut. Die Einfallsebene fällt dann mit einer beliebigen hoch indizierten Richtung zusammen. Da sich die hoch indizierten Kristallrichtungen der Oberfläche nur um nicht auflösbar kleine Winkel unterscheiden, wird solch eine Richtung „Random“-Richtung genannt. Um axiale Gitterführung zu erreichen, wird der Kristall um seine Oberflächennormale gedreht, bis die Einfallsebene bei $\gamma_{\text{in}} = 0$ mit einer niedrig indizierten Richtung zusammenfällt.

Unter planarer Gitterführung sind die Trajektorien symmetrisch bezüglich der Oberflächennormalen, d.h. $\Phi_{\text{in}} = \Phi_{\text{out}}$ und $\theta = \Psi = 0$. Man spricht dann von „spekularer“ Reflexion. Der polare Streuwinkel Φ_s zwischen der Achse des einlaufenden Atomstrahls und der auslaufenden Trajektorie beträgt dann $\Phi_s = 2\Phi_{\text{in}}$. Über die Messung von Φ_s lassen sich damit Φ_{in} und die Position der Oberflächenebene ($\Phi_{\text{out}} = 0$) bestimmen. Dabei bezieht sich Φ_{in} bzw. Φ_{out} auf die atomaren Ebenen des Kristalls und nicht auf die aufgrund des Fehlschnitts davon immer etwas abweichende makroskopische Oberfläche [106].

2.2.2 Kontinuumsnäherung

Gittergeführte Projektile bewegen sich näherungsweise parallel zu den Atomketten bzw. Atomebenen. Ein Projektilatom im Abstand ρ zur Achse einer unendlich langen Atomkette mit Kettenglied-Abstand D an der Position y bezüglich des Atoms $j = 0$ hat eine potentielle Energie von

$$\hat{V}(y, \rho) = \sum_{j=-\infty}^{\infty} V(r_j) \quad \text{mit} \quad r_j = \sqrt{(jD - y)^2 + \rho^2} \quad (2.23)$$

wobei $V(r_j)$ das Paarpotential zwischen dem jeweiligen Projektil-Atom und dem Atom j der Kette ist. Wenn sich das Projektil parallel zur Atomkette bewegt, dann oszilliert $\hat{V}(y, \rho)$ zwischen dem Maximalwert bei $y = jD$ und dem Minimum bei $y = (j + 1/2)D$. Im Mittel ergibt sich eine potentielle Energie von

$$\bar{V}(\rho) = \frac{2}{D} \int_{jD}^{(j+1/2)D} \hat{V}(y, \rho) \, dy = \frac{2}{D} \int_0^{D/2} \sum_{j=-\infty}^{\infty} V(r_j) \, dy \quad (2.24)$$

Da die Äquipotentialflächen von $\bar{V}(\rho)$ rotationssymmetrisch bezüglich der Kettenachse sind, wird das axial gemittelte Potential einer Atomkette auch Zylinderpotential genannt. Der Beitrag des Atoms $-j$ zum Integral mit den Grenzen 0 und $D/2$ in Gl. (2.24) ist genauso groß, wie der Beitrag des Atoms $j = 0$ zu $\bar{V}(\rho)$ bei der Mittlung über das Intervall von jD bis $(j + 1/2)D$. Aufgrund dieser Symmetrie und da $V(r) = V(-r)$ vereinfacht sich Gl. (2.24) zu [94–96]

$$\begin{aligned} \bar{V}(\rho) &= \frac{2}{D} \sum_{j=-\infty}^{\infty} \int_0^{D/2} V(r_j) \, dy = \frac{2}{D} \sum_{j=-\infty}^{\infty} \int_{-jD}^{(1/2-j)D} V(r_{j=0}) \, dy \\ &= \frac{2}{D} \int_0^{\infty} V\left(\sqrt{y^2 + \rho^2}\right) \, dy \end{aligned} \quad (2.25)$$

Für geschirmte Coulomb-Potentiale $V(r)$, deren Abschirmfunktion als Summe von Exponentialfunktionen gegeben sind, lässt sich dieses Integral analytisch lösen [93, 95, 96]. Durch Einsetzen von Gl. (2.14) in Gl. (2.25) ergibt sich

$$\begin{aligned} \bar{V}(\rho) &= \frac{2Z_1 Z_2}{D} \int_0^{\infty} \frac{1}{\sqrt{y^2 + \rho^2}} \sum_i a_i \exp\left(-b_i \sqrt{y^2 + \rho^2}/a_s\right) \, dy \\ &= \frac{2Z_1 Z_2}{D} \sum_i a_i K_0(b_i \rho/a_s) \end{aligned} \quad (2.26)$$

Dabei ist K_0 die modifizierte Besselfunktion zweiter Art nullter Ordnung (MacDonald-Funktion). Deren Ableitung ist $K'_0 = -K_1$. Damit beträgt die mittlere Kraft zwischen Projektil und Atomkette

$$\bar{F}(\rho) = -\frac{\partial}{\partial \rho} \bar{V}(\rho) = \frac{2Z_1 Z_2}{D} \sum_i a_i b_i K_1(b_i \rho / a_s) \quad (2.27)$$

Das Potential eines Atoms, welches sich im Abstand z zur Oberfläche parallel zu den Atomketten bewegt, ergibt sich aus der Superposition der Zylinderpotentiale der Atomketten k aller Atomlagen l zu

$$V(x, z) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{k=-\infty}^{\infty} \bar{V}(\rho_{lk}) \quad (2.28)$$

In der Regel ist es ausreichend, nur Atomketten $-4 < k < 4$ und Lagen $l < 3$ bei der Summation zu berücksichtigen. Auf die gleiche Weise lassen sich auch die Kräfte nach Gl. (2.27) komponentenweise addieren.

Zur Illustration ist in Abb. 2.1b die Äquipotentialfläche $V(x, y, z) = 3 \text{ eV}$ des effektiven Potentials bei axialer Oberflächen-Gitterführung für Streuung von He-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung dargestellt, wie sie sich bei axialer Mittelung (entlang $y = \langle 110 \rangle$) aus dem Potential bei der Superposition von HF-Paarpotentialen ergibt. Das effektive Potential ist weniger komplex als das ungemittelte Potential (vergl. Abb. 2.1a). Die experimentellen Daten aus der streifenden Streuung schneller Atome sind daher einfacher zu interpretieren als die Daten aus der Streuung thermischer Atome mit großem Einfallswinkel.

Die Ersetzung des 3D-Potentials $V(x, y, z)$ durch ein über y entlang der Atomketten gemitteltes kontinuierliches Potential $V(x, z)$ ist eine sehr gute Näherung, wenn die Ablenkung des Projektils innerhalb des Abstands der Atome der Kette klein ist. Für die Streuung unter streifendem Einfallswinkel mit Projektilenergien im Bereich von keV ist diese Bedingung erfüllt [21, 97–99, 107]. Das Streuproblem wird damit um eine Dimension reduziert. Es muss nur noch die Bewegung des Projektils mit der kinetischen Energie E_{\perp} im zweidimensionalen Potential $V(x, z)$ berechnet werden, denn die Geschwindigkeit parallel zu den Atomketten bleibt während des Streuprozesses konstant.

Ist das interatomare Potential $V(r)$ nicht in der Form von Gl. (2.14) gegeben, dann kann man das Integral in Gl. (2.25) entweder numerisch berechnen oder an die Abschirmfunktion $f(r) = V(r) r / (Z_1 Z_2)$ eine Summe von Exponentialfunktionen anpassen, sodass Gl. (2.14) eine gute Näherung des Potentials ist. Dabei muss die Anpassung das Potential nur bis zur für die Mittelung relevanten maximalen Energie $V(r=z)$ beschreiben. Als günstig haben sich vier Exponentialfunktionen mit jeweils zwei negativen und zwei positiven Faktoren a_i erwiesen, wobei die Exponenten b_i für eine numerisch

stabile Funktion möglichst verschieden sein sollten. Solch eine Anpassung erlaubt auch eine einfache Umstellung von Trajektoriensimulationen, die auf Gl. (2.27) mit den Parametern des ZBL- oder des OCB-Potentials basieren (Tab. 2.1), auf andere Potentiale, wie z.B. individuell berechnete HF-Potentiale. In dem in Abschn. 2.3.6 beschriebenen Simulationsprogramm wurde sowohl die numerische Mittlung nach Gl. (2.24) bzw. Gl. (2.25) als auch die analytische Lösung mit K_0 nach Gl. (2.26) bzw. K_1 nach Gl. (2.27) implementiert. Es ergeben sich keine signifikanten Unterschiede zwischen numerischer Mittlung und der analytischen Lösung mit den Parametern aus der Anpassung von Gl. (2.14) für das gleichen Potential.

Ist das Projektil-Oberfläche-Potential nicht wie in Gl. (2.17) als Superposition von Paarpotentialen, sondern bereits in dreidimensionaler Form $V(x, y, z)$ gegeben, z.B. als Ergebnis einer entsprechenden DFT-Rechnung, dann wird dieses über eine Periode Δy des Potentials entlang y durch

$$V(x, z) = \frac{1}{\Delta y} \int_{y_0}^{y_0 + \Delta y} V(x, y, z) dy \quad (2.29)$$

gemittelt. Ein mit Gl. (2.29) gemittelttes paarweise additives Potential nach Gl. (2.17) ist mit dem Potential aus der Superposition der entsprechenden Kettenpotentiale nach Gl. (2.28) identisch.

Gl. (2.23) gilt unter der Annahme, dass die Atome der Kette an ihren Gitterplätzen starr fixiert sind. Simulationen haben gezeigt, dass der Rückstoß der Atome der Oberfläche (recoil) bei der streifenden Streuung vernachlässigbar ist [98] und nur die thermischen Auslenkungen der Atome senkrecht zur Oberfläche einen signifikanten Effekt auf die Trajektorien haben [97]. Die thermischen Auslenkungen können bei der axialen Mittlung in Gl. (2.23) berücksichtigt werden. Das Zylinderpotential wird dadurch bei großen Abständen ρ geringfügig stärker und bei sehr kleinen ρ schwächer (siehe Fig. 28 in Ref. [94]). Die Auswirkungen auf das Ergebnis der Simulationen sind gering [97, 107]. Sie werden in dieser Arbeit an entsprechender Stelle diskutiert.

Höher indizierte Atomketten haben hohe Kettenglied-Abstände D , der Abstand der Ketten zueinander ist daher klein. Die Überlagerung vieler Zylinderpotentiale mit kleinem Abstand nach Gl. (2.28) ergibt ein Potential mit vernachlässigbarer Korrugation der Äquipotentialflächen $V(x, z) \approx V(z)$. Das Potential kann durch ein über die Einheitszelle der Oberfläche gemittelttes planares Potential $V(z)$ genähert werden. Der Streuprozess vollzieht sich dann unter planarer Gitterführung. Die Streuung an einer Oberfläche entlang einer hochindizierten Richtung (Random-Richtung) ist ein Spezialfall der planaren Gitterführung. Da aus dem Potential $V(z)$ keine Kraft in Richtung x (senkrecht zur Einfallsebene) resultiert, werden die Projektile nicht azimuthal abgelenkt. Weil sich für alle hochindizierten Richtungen das

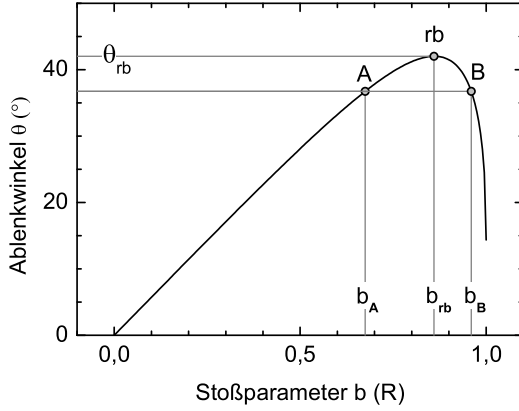


Abb. 2.3: Ablenkfunktion für Streuung von Licht am Wassertropfen nach Gl. (2.30) für $\eta = 4/3$ als Funktion des Stoßparameters b in Einheiten des Tropfenradius R . Der Punkt rb repräsentiert den Lichtstrahl mit maximalem Ablenkwinkel θ_{rb} . Zwei Strahlen A und B mit gleichem Ablenkwinkel θ aber unterschiedlichen Stoßparametern b_A bzw. b_B sind markiert.

gleiche Potential $V(z)$ ergibt, unterscheiden sich die entsprechenden Streuverteilungen nicht.

2.3 Quanten-Regenbogenstreuung

2.3.1 Der Regenbogen in der Optik

In dieser Arbeit werden Analogien zwischen dem Regenbogen bei der Streuung von Atomen in Potentialen und dem optischen Regenbogen bei Streuung von Licht am Wassertropfen gezogen. Darum werden hier kurz die grundlegenden Ideen zur Entstehung des atmosphärischen Regenbogens dargestellt.

Bei der Rückstreuung von Lichtstrahlen an einem kreisförmigen Wassertropfen beträgt der Ablenkwinkel θ zur Achse des einfallenden Strahls

$$\theta(b) = 4 \arcsin(b/\eta) - 2 \arcsin(b) \quad (2.30)$$

wobei b der Stoßparameter, d.h. der Abstand des einfallenden Strahls zur parallelen Gerade durch das Zentrum des Tropfens in Einheiten des Tropfenradius R und η der von der Wellenlänge des Lichts abhängige Brechungsindex von Wasser ist. In Abb. 2.3 ist diese sogenannte Ablenkfunktion für $\eta = 4/3$ (für Licht mit $\lambda = 589 \text{ nm}$) dargestellt. Die Funktion Gl. (2.30) hat ein Maximum bei $b_{rb} = \sqrt{(4 - \eta^2)}/3$. Der Maximale Ablenkwinkel ist der Regenbogenwinkel

$$\theta_{rb} = 4 \arcsin\left(\frac{1}{\eta} \sqrt{\frac{(4 - \eta^2)}{3}}\right) - 2 \arcsin\left(\sqrt{\frac{(4 - \eta^2)}{3}}\right) \quad (2.31)$$

Für $\eta = 4/3$ ergibt sich daraus $\theta_{rb} \approx 42^\circ$.

Alle Strahlen mit einem Stoßparameter in der Umgebung von b_{rb} werden unter ähnlichem Ablenkwinkel $\theta \approx \theta_{rb}$ gestreut. Die Lichtstrahlen werden also auf den Regenbogenwinkel fokussiert, was die Lichtintensität bei θ_{rb}

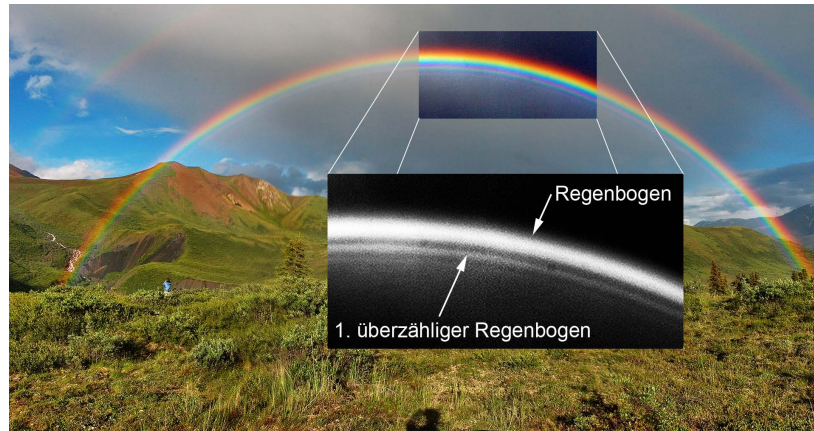


Abb. 2.4: Atmosphärischer Regenbogen aus Ref. [116]. Das eingefügte Bild zeigt einen vergrößerten in Graustufen konvertierten Ausschnitt, dessen Kontrast erhöht wurde, um die Modulation der Lichtintensität hervorzuheben.

erhöht. Diese Erklärung des Regenbogens geht auf Descartes (1637) zurück [108].

Der Effekt ist auch bei der Streuung von Atomen an Oberflächen zu beobachten [109–111]. Unter den Winkeln, bei denen die Ablenkfunktion ein Extremum aufweist, ist die Intensität der gestreuten Atome erhöht. In Analogie zum Regenbogen in der Optik wird der Effekt Regenbogenstreuung und der entsprechende Winkel Regenbogenwinkel genannt. Eine Übersicht über die Regenbogenstreuung an Oberflächen findet sich in Ref. [111]. Regenbögen treten unter anderem auch bei Gitterführung durch dünne Kristalle [112, 113] und Nanotubes [114] oder bei planarer Oberflächen-Gitterführung an Stufenkanten [115] auf.

Abb. 2.4 zeigt ein Foto des atmosphärischen Regenbogens. Da θ_{rb} über $\eta(\lambda)$ von der Wellenlänge des Lichts abhängt, ist die Intensität je nach Farbe unter unterschiedlichen Winkeln erhöht. Bei genauerer Betrachtung von Abb. 2.4 fällt auf, dass unterhalb des Regenbogens ein sogenannter Interferenzregenbogen, auch „überzähliger Regenbogen“ (supernumerary) genannt, zu erkennen ist. Dieser ist nicht mit dem sekundären Regenbogen zu verwechseln, der sich oberhalb des (primären) Regenbogens befindet. Das eingefügte Bild zeigt einen vergrößerten in Graustufen konvertierten Ausschnitt, dessen Kontrast erhöht wurde, um die Modulation der Lichtintensität hervorzuheben. Die überzähligen Regenbögen sind nur mit der Wellennatur des Lichts erklärbar. Nach Gl. (2.30) haben jeweils zwei Strahlen A und B mit unterschiedlichem Stoßparameter b_A und b_B den gleichen Ablenkwinkel $\theta < \theta_{rb}$ (siehe Abb. 2.3). Diese beiden Strahlen können miteinander interferieren. In Abb. 2.5a ist solch ein Fall skizziert. Die Schattierung symbolisiert die Phase der Welle. Da die beiden Strahlen bei der Streuung unterschiedliche Wege zurücklegen, weisen sie nach der Streuung eine Phasenverschie-

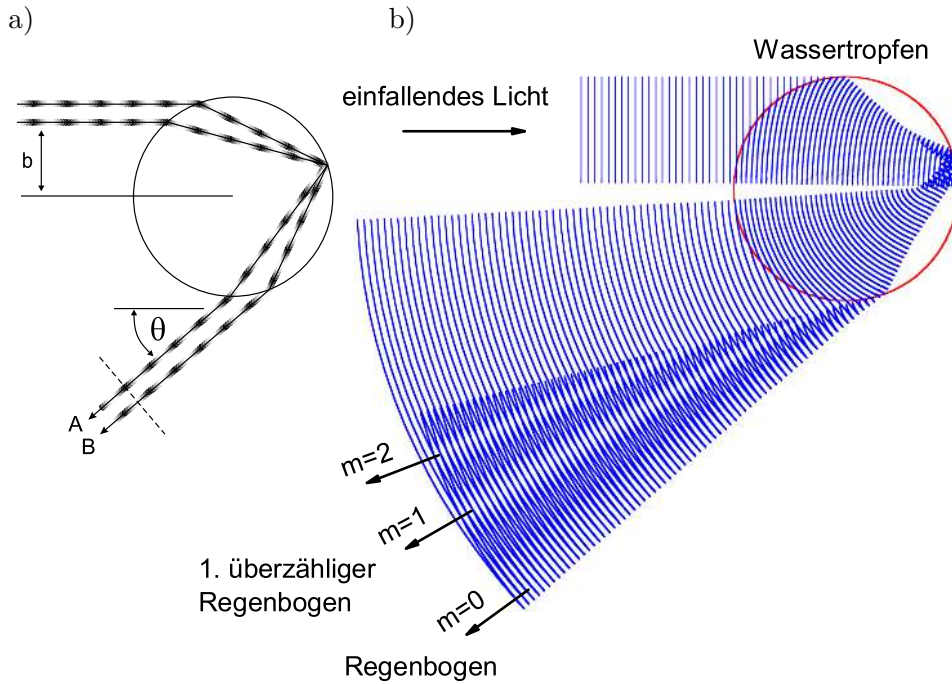


Abb. 2.5: Skizze der Reflexion von Licht an einem Wassertropfen. **a)** Zwei Lichtstrahlen A und B , die auf unterschiedlichen Wegen unter gleichem Ablenkwinkel gestreut werden. Die Schattierung symbolisiert die Phase. Die Phasenfläche (gestrichelte Linie) soll die Phasenverschiebung hervorheben. **b)** Interferierende Wellenfronten aus Ref. [117, 118].

bung auf. Im gezeigten Fall interferieren die Strahlen destruktiv, was durch die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung liegenden Phasenfläche (gestrichelte Linie) verdeutlicht wird. Die Phasenbeziehung hängt dabei von θ ab. In Abb. 2.5b sind die Wellenfronten für alle Stoßparameter $0 < b < R$ und damit alle Ablenkwinkel $0 < \theta < \theta_{rb}$ aus einer Arbeit von Fraser [117, 118] dargestellt. Die Winkel, unter denen es zu destruktiver Interferenz kommt, sind als dunkle Bereiche gut zu erkennen. Die Winkel für konstruktive Interferenz sind mit Pfeilen markiert. Die Ordnung m eines überzähligen Regenbogens entspricht dem Vielfachen von λ_{dB} im Wegunterschied der jeweiligen konstruktiv interferierenden Strahlen A und B .

Die Ablenkwinkel der überzähligen Regenbögen θ_m sind sowohl von der Wellenlänge λ des Lichts, als auch vom Radius R des Tropfens abhängig. In Abb. 2.6 ist der atmosphärische Regenbogen für verschieden große Wassertropfen aus einer Simulation von Laven [119] dargestellt. Um überzählige Regenbögen beobachten zu können, müssen die Regentropfen also klein (linkes Bild, $R = 100 \mu\text{m}$) und möglichst gleichgroß sein. Da Regentropfen meist unterschiedlich große Radien aufweisen, überlagern sich die verschiedenen Interferenzmuster im Allgemeinen, sodass die überzähligen Regenbögen in

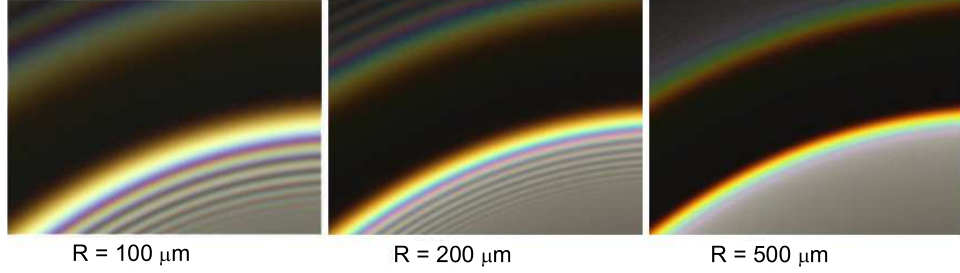


Abb. 2.6: Simulation des atmosphärischen Regenbogens für Wassertropfen mit einem Radius $R = 100, 200$ und $500 \mu\text{m}$ aus Ref. [119].

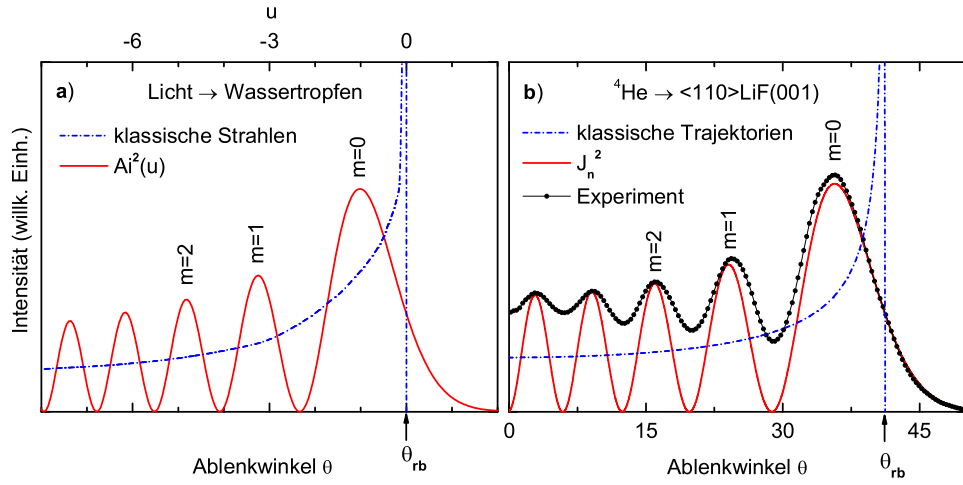


Abb. 2.7: Vergleich zwischen klassischer Intensität (blaue Strich-Punkt-Kurve) und Interferenzmuster (rote durchgezogene Kurve). m ist die Ordnung des überzähligen Regenbogens. **a)** Streuung von Lichtstrahlen am Wassertropfen aus Ref. [121] mit u aus Gl. (2.32). **b)** Streuung von ^4He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_0 = 3 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 1,04^\circ$ aus dem Experiment (schwarze Punkte), klassischer Intensität nach Gl. (2.53) für eine sinusförmige harte Wand mit $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$ sowie semiklassische Lösung mit J_n^2 nach Gl. (2.79).

der Natur (Abb. 2.4) nur selten zu sehen sind. Im Labor können die überzähligen Regenbögen bei der Reflexion eines Laserstrahls an einem durch Ultraschall in der Schwebe gehaltenen Wassertropfen studiert werden [120].

Die theoretische Beschreibung der Interferenzmuster ist nicht trivial. In „Airy-Näherung“ (siehe Ref. [121, 122]) wird die Ablenkfunktion Abb. 2.3 im Bereich um b_{rb} parabolisch approximiert. In dieser Näherung ist die Intensität gegeben durch [123]

$$I = \left(\frac{R}{\lambda}\right)^{2/3} \text{Ai}^2(u) \quad \text{mit} \quad u = (\theta - \theta_{\text{rb}}) \left(\frac{2\pi R}{3\lambda}\right)^{2/3} \frac{\sqrt{\eta^2 - 1}}{(4 - \eta^2)^{1/6}} \quad (2.32)$$

Dabei ist Ai die Airy-Funktion und θ_{rb} der klassische (geometrische) Re-

genbogenwinkel nach Gl. (2.31). In Abb. 2.7a wird diese Funktion mit der klassischen Intensität verglichen, wie sie sich aus Gl. (2.30) ergibt. Auf der hellen Seite des klassischen Regenbogens $\theta < \theta_{rb}$ ist das Argument u der Airy-Funktion negativ und Ai^2 beschreibt die überzähligen Maxima m . Auf der dunklen Seite $\theta > \theta_{rb}$ sinkt Ai^2 exponentiell gegen null, was die Abwesenheit geometrischer Strahlen in diesem Bereich widerspiegelt. Im Gegensatz zur klassischen Beschreibung ist die Intensität bei θ_{rb} ($\text{Ai}^2(0)$) endlich. Das Maximum $m = 0$ ist gegenüber θ_{rb} zu kleineren Winkeln verschoben. Die Abweichungen von der Airy-Näherung Gl. (2.32) nehmen zu, je größer $|\theta - \theta_{rb}|$ ist. Weiterführende Theorien sind in Ref. [119, 122, 124, 125] zu finden.

Auch bei der Streuung von Atomen in Potentialen treten in den Intensitätsverteilungen Muster auf, die durch die Interferenz zwischen verschiedenen Wegen zum gleichen Ablenkwinkel erklärt werden können. In Analogie zum atmosphärischen Regenbogen werden diese Interferenzeffekte überzählige Regenbögen genannt. So wie beim atmosphärischen Regenbogen der Radius des Tropfens R und die Wellenlänge des Lichts λ die Ablenkwinkel der überzähligen Regenbögen θ_m bestimmt, hängen die überzähligen Regenbögen bei der Streuung von Materiewellen von der Form des Potentials und der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} ab.

Bei binären Stößen zwischen zwei Atomen mit Energien im sub-eV-Bereich [126–130] kann das Projektilatom von den anziehenden Van-der-Waals-Kräften auf zwei verschiedenen Wegen A und B um das Target-Atom herum in den gleichen Winkel abgelenkt werden. Die resultierenden überzähligen Regenbögen können in Airy-Näherung analysiert werden, um das interatomare Potential im meV-Bereich im Abstand von einigen Å zu bestimmen [131–133]. Auch bei binären Stößen mit Energien im Bereich von etwa 100 MeV werden überzählige Regenbögen beobachtet (nuclear rainbow scattering), die hier auch Airy-Strukturen genannt werden [134–137]. Sie werden als Interferenz zwischen verschiedenen Wegen im Potential aus anziehendem Kernpotential und abstoßendem Coulomb-Potential im Abstandsbereich von einigen Femtometern interpretiert. Bei der Beugung thermischer Atome an Oberflächen treten überzählige Regenbögen in Form einer Intensitätsmodulation der Bragg-Reflexe auf [18, 138–143]. Sie haben einen engen Bezug zu den Beugungsmustern bei axialer Oberflächen-Gitterführung schneller Atome, deren Entstehung in den folgenden Abschnitten erläutert wird. Die in Abb. 2.7b gezeigte Modulation der Intensität bei Streuung von ^4He -Atomen mit $E_0 = 3 \text{ keV}$ an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (schwarze Punkte) ist mit klassischer Streuung (blaue Strich-Punkt-Kurve) genauso wenig zu erklären wie die überzähligen Regenbögen des atmosphärischen Regenbogens mit geometrischen Lichtstrahlen (vergl. Abb. 2.7a und b). Solche Strukturen in den Intensitätsverteilungen wurden von Andreev [144] in einer quantenmechanischen Beschreibung der streifenden Streuung schneller Atome vorhergesagt.

2.3.2 Der klassische Oberflächen-Regenbogen

Bei der Streuung von Atomen an Oberflächen treten in den Intensitätsverteilungen der gestreuten Projektile unter bestimmten Winkeln Maxima auf, die von McClure [109, 110, 145, 146] als klassisches Regenbogenmuster identifiziert und als „Oberflächen-Regenbogen“ bezeichnet wurden (siehe dazu Fig. 22 in Ref. [147] oder Fig. 4 in Ref. [109]). Die Regenbogenwinkel bei Streuung unter großem Einfallswinkel wurden theoretisch und experimentell an verschiedenen Oberflächen untersucht, wie z.B. in Ref. [88, 89, 148–153]. Bei streifendem Einfallswinkel treten in den gemessenen und simulierten Intensitätsverteilungen bei Streuung entlang niedrig indizierter Richtungen halbkreisförmige Muster auf [100, 154–158]. Diese sogenannten „Bananen“ sind charakteristisch für axiale Oberflächen-Gitterführung. Danailov *et al.* [97–99] konnten durch Simulationen zeigen, dass auch die Streuverteilungen bei axialer Oberflächen-Gitterführung alle Merkmale für Regenbogenstreuung aufweisen und dass die entsprechenden Regenbogenwinkel sehr sensitiv vom zugrundeliegenden Projektil-Oberfläche-Potential abhängen. Dabei sind die Regenbogenwinkel aufgrund des einfacheren effektiven Wechselwirkungspotentials (axiale Mittlung) deutlich leichter zu interpretieren als bei Streuung unter großem Einfallswinkel am dreidimensional korrigierten Potential (vergl. Abb. 2.1a und b). In ersten experimentellen Untersuchungen konnten bei der streifenden Streuung von He-Atomen an Fe(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung klare Regenbogenmaxima aufgelöst werden [105, 159, 160]. Die Maxima resultieren aus der erhöhten Wahrscheinlichkeit für Streuung unter maximalem Ablenkwinkel. Zur Veranschaulichung sind in Abb. 2.8 experimentelle Regenbogenmuster dem theoretischen Modell gegenübergestellt.

In Abb. 2.8a und c werden einige Äquipotentialflächen $V(x, z) = \text{konst}$ des Potentials zwischen einem Ar-Atom und einer Ag(111)-Oberfläche bei Streuung entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung gezeigt (rote Kurven), wie sie sich aus der Überlagerung von Zylinderpotentialen nach Gl. (2.28) mit Gl. (2.26) für das OCB-Potential ergeben. Zur Illustration sind Atomketten aus dem Kugelmodell der Oberfläche angedeutet. Die grauen Kurven sind ein repräsentatives Ensemble von klassischen Projektil-Trajektorien aus der in Abschn. 2.3.6 beschriebenen Simulation auf Basis des gleichen Potentials für eine Senkrechtenergie von a) $E_{\perp} = 6 \text{ eV}$ und c) 40 eV . Da die einfallenden Atome zu Beginn keine Geschwindigkeitskomponente in x -Richtung (senkrecht zur Einfallsebene) haben, ist die Startposition x bezüglich der Achse der Atomkette zugleich der Stoßparameter der jeweiligen Trajektorie. Aufgrund der Symmetrie der Oberfläche haben alle Trajektorien ein symmetrisches Äquivalent im Bereich $0 < x < d$. In Abb. 2.9a ist die zugehörige Ablenkfunktion $\theta(x)$ als rote Kurve dargestellt. Für die Trajektorien mit Stoßparameter $x = 0$ beim Maximum der Äquipotentialflächen und mit $x = d/2$ am Minimum genau zwischen zwei benachbarten Atomketten gibt es keine

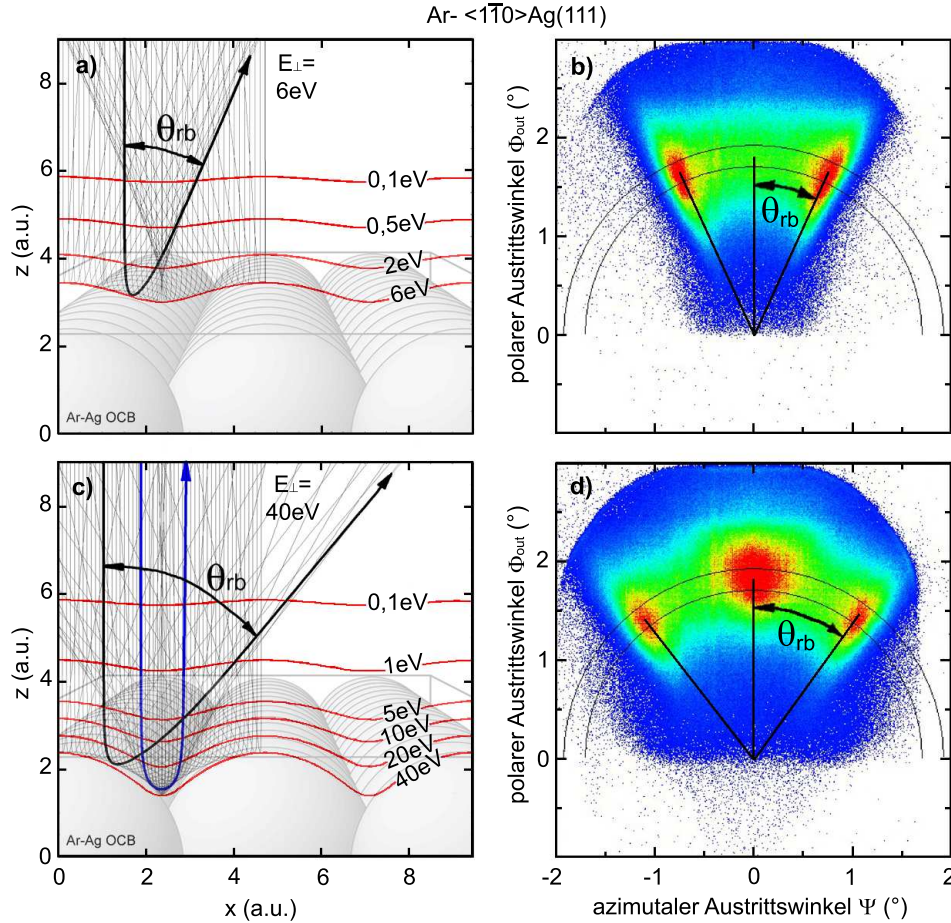


Abb. 2.8: **Links:** Trajektorien aus der klassischen Simulation für Streuung von Ar-Atomen an Ag(111) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung mit einer Senkrechterenergie von a) $E_{\perp} = 6$ eV und c) 40 eV auf Basis des OCB-Potentials in Projektion auf die Ebene senkrecht zu den $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Atomketten. Der maximale Ablenkwinkel θ entspricht dem Regenbogenwinkel θ_{rb} . Zur Illustration sind Atomketten aus dem Kugelmodell der Oberfläche eingeblendet. Die roten Kurven repräsentieren Äquipotentialflächen $V(x, z) = \text{konst}$ des Ar-Ag(111)-Wechselwirkungspotentials in Kontinuumsnäherung. **Rechts:** Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Intensitätsverteilungen für Streuung von Ar-Atomen an Ag(111) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{in} = 1,8^\circ$ bei b) $E_{\perp} \approx 6$ eV und d) $E_{\perp} \approx 40$ eV. Rot bedeutet hohe und blau niedrige Intensität. Der Kreisring markiert den Bereich elastisch gestreuter Projektile (vergl. Abb. 2.2). Die dem Regenbogenwinkel θ_{rb} entsprechenden Ablenkwinkel bei der höchsten Intensität an den Rändern der Verteilung sind mit Linien markiert.

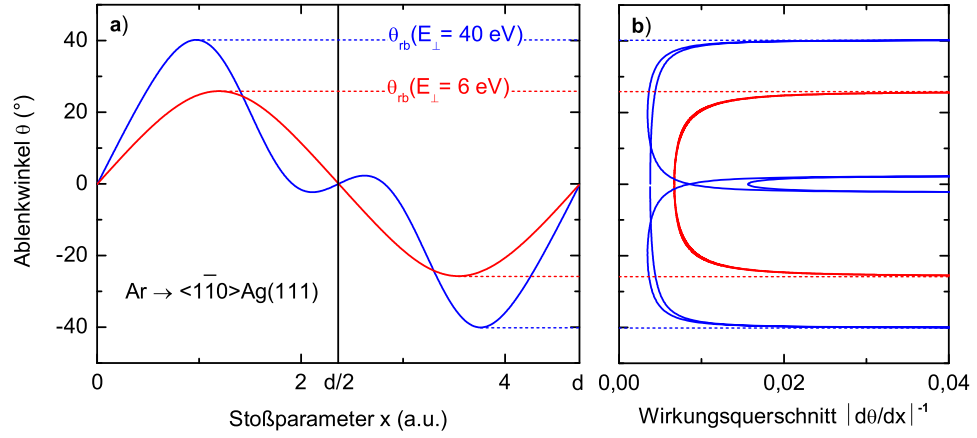


Abb. 2.9: **a)** Ablenkfunktion $\theta(x)$ für Streuung von Ar-Atomen an Ag(111) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung aus der klassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des OCB-Potentials bei $E_{\perp} = 6$ eV (rote Kurve) und $E_{\perp} = 40$ eV (blaue Kurve). **b)** Auf die Breite des Gitterführungschanals d normierter klassischer Wirkungsquerschnitt $\sigma = |d\theta/dx|^{-1}$ für die Werte aus a). Die Regenbogenwinkel θ_{rb} sind markiert (gestrichelte Geraden).

Kraft senkrecht zur Einfallsebene, daher ist der Ablenkwinkel $\theta = 0$. Für alle anderen Stoßparameter ist $|\theta| > 0$. Die Ablenkfunktion $\theta(x)$ hat demnach mindestens einen Extremwert, an dem die Wahrscheinlichkeit für die Streuung unter dem entsprechenden Ablenkwinkel erhöht ist. In Abb. 2.9b ist der zur klassischen Intensität proportionale klassische Wirkungsquerschnitt $\sigma = |d\theta/dx|^{-1}$ für die Werte aus Abb. 2.9a dargestellt. Die Intensität zeigt ein Maximum, wenn $d\theta/dx = 0$, also bei maximalem Ablenkwinkel. In Analogie zur Erhöhung der Lichtintensität bei der im vorherigen Abschnitt diskutierten Streuung von Licht an Wassertropfen werden diese Maxima Regenbögen genannt und die zugehörigen Regenbogenwinkel mit θ_{rb} bezeichnet. In Abb. 2.8a ist die Trajektorie mit dem größten Ablenkwinkel θ_{rb} hervorgehoben. In Abb. 2.8b ist die zu 2.8a korrespondierende experimentelle Intensitätsverteilung für Streuung von Ar-Atomen an Ag(111) unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{in} = 1,8^\circ$ mit $E_0 = 6$ keV dargestellt. Der makroskopisch messbare Ablenkwinkel θ_{rb} des Intensitätsmaximums entspricht dem mikroskopischen, von der Korrugation der Äquipotentialflächen abhängenden Regenbogenwinkel θ_{rb} .

Die zu höheren Energien korrespondierenden Äquipotentialflächen liegen dichter an der Oberfläche und sind daher stärker korrugiert. Deshalb ist θ_{rb} bei höherer Senkrechtere Energie E_{\perp} größer. Während die Projektile mit $E_{\perp} = 6$ eV in Abb. 2.8a höchstens die schwach korrugierte Äquipotentialfläche für $V(x, z) = 6$ eV erreichen, werden sie mit $E_{\perp} = 40$ eV im stärker korrugierten Bereich des Potentials stärker abgelenkt. Die Einhüllende der Umkehrpunkte der Trajektorien unterscheidet sich von der Äquipotentialflä-

che für $V(x, z) = E_{\perp}$, da bereits vor Erreichen des Umkehrpunkts kinetische Energie aus der Senkrechtbewegung in eine Bewegung quer zur Einfallsebene überführt wird. Das zusätzliche Maximum in Abb. 2.8d bei $\Psi = 0$ resultiert aus der Doppelstreuung zwischen benachbarten Atomketten und den sich daraus ergebenden zusätzlichen Extremwerten mit $\theta \approx 0$ in der Ablenkfunktion (blaue Kurven in Abb. 2.9). Eine entsprechende Trajektorie ist in Abb. 2.8c blau hervorgehoben.

Auch in der zu Abb. 2.8c korrespondierenden experimentellen Intensitätsverteilung in Abb. 2.8d ist θ_{rb} größer als in Abb. 2.8b. Auf diese Weise spiegelt die Funktion $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ die Korrugation des Projektil-Oberflächen-Potentials wider [97–99, 105, 159, 160]. Die Invertierung, d.h. die eindeutige Bestimmung eines Potentials $V(x, z)$ aus der Funktion $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ ist jedoch nicht möglich, da verschiedene Potentiale $V(x, z)$ die gleiche Funktion $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ erzeugen können [161]. Die Empfindlichkeit von θ_{rb} auf das Potential kann aber ausgenutzt werden, indem man die aus verschiedenen theoretischen Potentials resultierenden Regenbogenwinkel mit den experimentell ermittelten Werten vergleicht und auf diese Weise das beste Modell bestimmt. Die gemessene und die theoretische Kurve $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ müssen dabei für mindestens zwei verschiedene Gitterführungsrichtungen übereinstimmen. Für diese Arbeit wurden für verschiedene Projektil-Oberfläche-Systeme die klassischen Regenbogenwinkel bei axialer Oberflächen-Gitterführung vermessen und mit den theoretischen Werten aus den in Abschn. 2.1 vorgestellten Ansätzen für das entsprechende Potential verglichen, um zu ermitteln, welche Modelle für die streifende Streuung schneller Atome geeignet sind.

Ein optisches Analogon zur Regenbogenstreuung von Atomen bei streifendem Einfallswinkel am gewellten Kontinuumpotential wie in Abb. 2.1b ist die Streuung von parallelem Licht an einem gewellten Spiegel unter streifendem Winkel. In Abb. 2.10 ist das Foto der Intensitätsverteilung auf einem Schirm bei Streuung von Licht eines Diaprojektors an einem Stück Wellblechdach gezeigt. Am Rande der Verteilung, bei maximalem Ablenkwinkel θ_{rb} ist die Intensität überhöht, so wie in Abb. 2.8 bei atomarer Regenbogenstreuung³.



Abb. 2.10: Regenbogenstreuung von Licht an Wellblech.

³Dieses ist eines der Demonstrationsexperimente, die für die „Lange Nacht der Wissenschaften“ aufgebaut wurden. Die Ablenkfunktion wurde über einen Laserstrahl, der die Stoßparameter der Lichtstrahlen abfährt, veranschaulicht.

2.3.3 Semiklassische Streutheorie

2.3.3.1 Materiewellen

Interferenzeffekte bei der Streuung massebehafteter Teilchen wie Elektronen, Neutronen oder Atome lassen sich nur mit der Quantentheorie verstehen. Der experimentelle Nachweis der Beugung von Elektronen an einer Ni(111)-Oberfläche durch Davisson und Germer [4, 5] und die erstmalige Beobachtung der Beugung von thermischen He-Atomen an LiF(001) durch Estermann und Stern [6] waren bedeutende Schritte auf dem Weg zur heute allgegenwärtigen Quantenphysik. Solche Beugungseffekte lassen sich mit dem Konzept der Materiewellen von de Broglie [3] beschreiben. Dabei wird jedem Teilchen einer Masse M mit einer Geschwindigkeit v (Impuls p) eine Wellenlänge zugeordnet, die De-Broglie-Wellenlänge

$$\lambda_{\text{dB}} = \frac{2\pi}{k} = \frac{h}{p} = \frac{h}{Mv} = \frac{h}{\sqrt{2ME_0}} \quad (2.33)$$

wobei h das Plancksche Wirkungsquantum und k der Betrag des Wellenvektors ist. Für die Geschwindigkeitskomponente v_{\perp} der Bewegung des Projektils senkrecht zur Oberfläche ergibt sich mit Gl. (2.19) entsprechend

$$\lambda_{\text{dB}\perp} = \frac{h}{Mv_{\perp}} = \frac{h}{\sqrt{2ME_{\perp}}} = \frac{h}{\sqrt{2ME_0 \sin^2 \phi_{\text{in}}}} = \frac{\lambda_{\text{dB}}}{\sin \phi_{\text{in}}} \quad (2.34)$$

Die De-Broglie-Wellenlänge bezüglich der Bewegung senkrecht zur Oberfläche $\lambda_{\text{dB}\perp}$ wird im Weiteren Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge genannt. Der Betrag des Wellenvektors bezüglich der Bewegung des senkrecht zur Oberfläche $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$ wird im Weiteren Senkrecht-Wellenzahl genannt.

So wie in der Optik sind Beugungseffekte in der Regel nur dann auflösbar, wenn die beugende Struktur in der Größenordnung der Wellenlänge liegt. Für langsame Elektronen mit kinetischen Energien zwischen 10 und 100 eV entspricht λ_{dB} der Größenordnung der Abstände benachbarter Atome kristalliner Festkörper. Die Messung der auftretenden Beugungsmuster bei Streuung langsamer Elektronen (LEED) [9] zählt heute zu den Standardmethoden bei der Untersuchung von geordneten Strukturen auf Oberflächen. Die typischen Energien bei der Beugung von thermischen Atomen und Neutronen liegen wegen ihrer größeren Masse bei einigen 10 meV. Für schnelle Atome mit Energien im Bereich von keV ist λ_{dB} rund drei Größenordnungen kleiner als die Strukturen auf der Oberfläche eines Kristalls. Beispielsweise ist einem ^4He -Atom mit einer Energie von $E_0 = 10 \text{ keV}$ eine De-Broglie-Wellenlänge von $\lambda_{\text{dB}} = 0,00143 \text{ \AA}$ zugeordnet. Die Streuung von schnellen Atomen an Oberflächen wurde daher bisher ausreichend genau im Rahmen der klassischen Mechanik beschrieben [21, 22]. Jedoch machten die in dieser Arbeit vorgestellten neuen experimentellen Befunde die Anwendung des Konzepts der Materiewellen nun auch für schnelle Atome notwendig.

2.3.3.2 Interferierende klassische Wege

Wenn eine quantenmechanische ebene Welle mit der Wellenlänge λ_{dB} auf eine Oberfläche trifft, dann gehen von jedem einzelnen Punkt der Oberfläche gestreute Wellen aus, die sich in alle Richtungen (kugelsymmetrisch) ausbreiten. An den meisten Orten interferieren die gestreuten Wellen miteinander destruktiv und nur einige wenige liefern einen Beitrag zur Intensität unter einem bestimmten Ablenkwinkel θ . In der semiklassischen Näherung werden nur die Orte berücksichtigt, welche auf einer klassischen Trajektorie liegen, da diese den größten Beitrag zur Streuamplitude A_{st} liefern. Man spricht auch von „interferierenden klassischen Wegen“ [162]. Diese Methode hat sich bei der Beschreibung der Streuung von Atomen in der Gasphase als zuverlässig erwiesen [126, 131, 133]. Die Näherung ist umso besser, je kleiner λ_{dB} ist. Für schnelle Atome sollte dies also eine gute Näherung sein.

Jede klassische Trajektorie j , die unter dem finalen Ablenkwinkel θ gestreut wird trägt zur Streuamplitude A_{st} unter diesem Winkel bei. Die Größe jedes Beitrags steht dabei in Beziehung zum jeweiligen klassischen differentiellen Wirkungsquerschnitt σ_j , d.h. der klassischen Wahrscheinlichkeit für die Streuung unter θ . Allgemein gilt [131, 133, 143]

$$A_{\text{st}} = \sum_j \sqrt{\sigma_j} \exp(i \varphi_j) \quad (2.35)$$

Die Phase φ_j jedes Amplitudenbeitrags wird durch das Integral des klassischen Impulses p entlang des Weges s der Trajektorie j bestimmt.

$$\varphi_j = \frac{1}{\hbar} \int_j p \, ds = \frac{M}{\hbar} \int_j v \, ds = 2\pi \int_j \frac{ds}{\lambda_{\text{dB}}} = \int_j k \, ds \quad (2.36)$$

Da während des Streuprozesses an einem Potential kinetische in potentielle Energie transferiert wird, variiert die Geschwindigkeit v und damit λ_{dB} . Diese Variation wird durch das Phasenintegral Gl. (2.36) berücksichtigt. Wird die Variation von λ_{dB} vernachlässigt, dann beträgt die Phase nach einer Strecke s

$$\varphi = \frac{s}{\lambda_{\text{dB}}} 2\pi = s\sqrt{2ME}/\hbar = ks \quad (2.37)$$

Bei der Beugung von Materiewellen interferieren nicht zwei verschiedene Projektile miteinander, sondern die verschiedenen möglichen Wege, die ein einzelnes Projektil bei der Streuung zu einem bestimmten Ablenkwinkel θ nehmen kann. Man spricht auch von Partialwellen des Projektils [126, 163]. Diese können je nach ihrer Phasenbeziehung beim jeweiligen Ablenkwinkel konstruktiv oder destruktiv interferieren, sodass die Wahrscheinlichkeit für Streuung unter dem einen Winkel hoch und unter dem anderen niedrig ist. Werden viele Atome nacheinander gestreut, dann bildet sich ein Beugungsmuster aus Bereichen hoher und niedriger Intensität. Wenn es nur

zwei verschiedene mögliche klassische Trajektorien A und B gibt, die zu einem bestimmten Ablenkwinkel θ führen, dann ergibt sich die Intensität aus der Phasendifferenz $\Delta\varphi = \varphi_B - \varphi_A$ nach Gl. (2.35) zu

$$I = |A_{\text{st}}|^2 = |\sqrt{\sigma_A} \exp(i\varphi_A) + \sqrt{\sigma_B} \exp(i\varphi_B)|^2 \quad (2.38)$$

$$\begin{aligned} &= |\sqrt{\sigma_A} + \sqrt{\sigma_B} \exp(i\Delta\varphi)|^2 \\ &= \sigma_A + \sigma_B + 2\sqrt{\sigma_A\sigma_B} \cos \Delta\varphi \end{aligned} \quad (2.39)$$

Im Fall, dass das Projektil den Weg A mit der gleichen Wahrscheinlichkeit genommen haben kann wie Weg B , wie z.B. bei der Reflexion an einer sinusförmigen Wand bei senkrechtem Einfall, gilt $\sigma_A = \sigma_B = \sigma/2$. Damit vereinfacht sich Gl. (2.39) zu

$$I = \sigma (1 + \cos(\Delta\varphi)) = 2\sigma \cos^2(\Delta\varphi/2) \quad (2.40)$$

Die Näherung durch Interferenz von klassischen Trajektorien bricht zusammen, wenn die Trajektorien die zu A_{st} beitragen zu dicht beieinander liegen, d.h. wenn die Punkte auf der Oberfläche, von denen die Wellen ausgehen, praktisch zusammenfallen [162, 164–167]. Dies ist insbesondere bei den Trajektorien mit Ablenk winkeln in der Nähe des klassischen Regenbogenwinkels der Fall. Die Interferenz klassischer Trajektorien wird daher auch als „primitiv semiklassisch“ bezeichnet [122, 132, 164, 167, 168], um sie von anderen semiklassischen Theorien [166, 168–172] zu unterscheiden, die auch an diesen singulären Punkten gültig sind.

2.3.3.3 Kohärenz

Um Beugungseffekte auch experimentell beobachten zu können, muss die Phasendifferenz $\Delta\varphi$ bei θ zeitlich konstant bleiben. Diese Eigenschaft des Systems nennt man Kohärenz. Inkohärente klassische Streuung ist dementsprechend die Streuung bei Abwesenheit einer definierten Phasenbeziehung. In der Quantentheorie ist der Begriff der Dekohärenz grundlegend [173]. Dekohärenz bezeichnet die im allgemeinen irreversible Entstehung klassischer Eigenschaften eines Quantensystems durch die Wechselwirkung mit den Freiheitsgraden seiner Umgebung. Bei der Streuung von Atomen an Oberflächen kommen z.B. elektronische Anregungen der Oberfläche als Dekohärenzprozess in Frage. Wenn ein Projektil bei der Streuung z.B. ein Elektron auslöst, dann erleidet es einen Energieverlust, was zu einer Änderung von λ_{dB} und damit zu einer Phasenverschiebung führt. Die thermischen Schwingungen der Atome der Oberfläche können ebenso zur Dekohärenz beitragen. Zwar bewegt sich das Projektil bei der streifenden Streuung so schnell über die Oberfläche, dass die thermischen Schwingungen relativ dazu wie eingefroren erscheinen [107], jedoch sind die Atome der Oberfläche bei jedem Projektil anders ausgelenkt. Daher unterscheiden sich die Trajektorien und die

Phasenbeziehung bei θ . Man kann dies auch als eine Verschmierung des Potentials durch die thermischen Bewegungen interpretieren [174].

Die thermischen Auslenkungen führen so zu einer Reduzierung der Kohärenz und damit der Intensität I der Beugungsmaxima im Vergleich zur Intensität ohne thermische Schwingungen I_0 . Dieser Effekt ist aus der Beugung von Neutronen, Röntgenstrahlen und thermischen Atomen bekannt und wird mit dem Debye-Waller-Faktor $f_{\text{DW}} = I/I_0$ beschrieben [20, 27, 175, 176], wobei

$$f_{\text{DW}} = \exp(-2W(T)) \quad (2.41)$$

$$W(T) = \frac{1}{2} \langle (\vec{u} \cdot \Delta \vec{k})^2 \rangle \quad (2.42)$$

Dabei ist $\Delta \vec{k}$ die Differenz zwischen dem gestreuten und dem einfallenden Wellenvektor und \vec{u} die Auslenkung des Gitteratoms um seine Ruhelage⁴. Die spitzen Klammern bedeuten thermischer Mittelwert. Je geringer also die thermische Auslenkung im Vergleich zur Wellenlänge ist, umso eher bleibt die Kohärenz erhalten. Die mittlere quadratische thermische Auslenkung senkrecht bzw. parallel zur Oberfläche beträgt im Hochtemperatur-Grenzfall [89, 97, 175, 177]

$$\langle u_{\perp, \parallel}^2 \rangle = 3\hbar^2 T / M_{\text{G}} k_{\text{B}} \Theta_{\text{D}\perp, \parallel}^2 \quad (2.43)$$

wobei M_{G} die Masse des Gitteratoms, k_{B} die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur der Oberfläche und $\Theta_{\text{D}\perp, \parallel}$ die Oberflächen-Debye-Temperatur senkrecht bzw. parallel zur Oberfläche ist. Simulationen haben gezeigt, dass nur die thermischen Auslenkungen senkrecht zur Oberfläche einen signifikanten Effekt auf die Trajektorien bei streifender Streuung haben [97]. Vernachlässigt man die thermischen Auslenkungen parallel zur Oberfläche [20], vereinfacht sich Gl. (2.42) zu

$$W(T) = \frac{1}{2} \langle u_{\perp}^2 \rangle (\Delta k_{\perp})^2 \quad (2.44)$$

Für spekulare Reflexion, bei der $\Delta k_{\perp} = 2k_{\perp}$ ist, ergibt sich für ein Projektil der Masse M_{P} aus $k_{\perp} = \sqrt{2M_{\text{P}}E_{\perp}}/\hbar$ und Einsetzen von Gl. (2.43) in Gl. (2.44)

$$W(T) = \frac{12M_{\text{P}}E_{\perp}T}{M_{\text{G}}k_{\text{B}}\Theta_{\text{D}\perp}^2} \quad (2.45)$$

Der Grad der Kohärenz f_{DW} ist also bei der Streuung von leichten Atomen an Oberflächen aus schweren Atomen mit großer Oberflächen-Debye-Temperatur höher und sinkt mit Erhöhung der Senkrechterenergie E_{\perp} und der Temperatur T . Für Streuung thermischer Atome kann daraus eine obere

⁴Dies gilt unter der Annahme, dass die Änderung der Äquipotentialfläche des Wechselwirkungspotentials direkt proportional von der Auslenkung u abhängt. Bei der Streuung von Atomen an Oberflächen ist diese Voraussetzung umso schlechter erfüllt, je kleiner die Energie und je stärker das Potential ist.

Energie von ca. 100 meV abgeschätzt werden [27, 29]. Darüber ist f_{DW} zu klein, um Beugungseffekte noch experimentell auflösen zu können.

Bei der streifenden Streuung wird das Projektil nicht von einzelnen ausgelenkten Atomen der Oberfläche abgelenkt, sondern an ganzen Atomketten gestreut. Das effektive Potential ergibt sich aus der Mittelung der Potentiale zwischen Projektil und den einzelnen ausgelenkten Atomen der Atomketten der Oberfläche entlang der Trajektorie (Abschn. 2.2.2). Das gemittelte Potential entspricht dem Potential einer ausgelenkten Atomkette [30]. Je kleiner der Einfallswinkel bezüglich der Atomketten ist, umso mehr zufällig ausgelenkte Atome tragen bei der Mittlung des Potentials bei und desto geringer ist die mittlere effektive thermische Auslenkung der Atomketten u_K . Bei streifender Streuung ist daher u_K gegenüber der mittleren Auslenkung der Target-Atome um einen Faktor \sqrt{N} reduziert, d.h. $u_K = u/\sqrt{N}$, wobei N die Anzahl der am Streuprozess beteiligten Atome der Atomkette ist [27, 28]. Daraus ergibt sich für die streifende Streuung ein modifizierter Debye-Waller-Faktor [28]

$$f_{\text{mDW}} = \exp(-2W(T)/N) \quad (2.46)$$

wobei N vom Einfallswinkel Φ_{in} , vom Potential und von der Gitterkonstante abhängt. Für Streuung von He-Atomen an LiF(001) unter $\Phi_{\text{in}} = 1^\circ$ wurde $N \approx 30$ abgeschätzt [27]. Eine zusätzliche Verringerung des Debye-Waller-Faktors durch einen Impulsübertrag vom Projektil auf einzelne Atome der Oberfläche kann bei der streifenden Streuung vernachlässigt werden [62, 176]. Im Gegensatz zur Streuung thermischer Atome können daher bei streifendem Einfallswinkel Φ_{in} die Beugungseffekte auch bei $E_\perp > 1$ eV noch sehr ausgeprägt sein. Für $\Phi_{\text{in}} = 0,8^\circ$ entspricht dies nach Gl. (2.19) einer Projektilenergie von $E_0 > 5$ keV.

2.3.4 Streuung an einer sinusförmigen harten Wand

Um einen Verständnis für die Ursachen der in den Kap. 5 bis 7 gezeigten experimentellen Beugungsmuster zu bekommen, wird hier zunächst der einfachste Fall, die Reflexion von Atomen an einer sinusförmigen harten Wand betrachtet. Die für diese Arbeit zum Vergleich mit dem Experiment durchgeführten Simulationen mit realistischen Potentialen beruhen auf den gleichen Ansätzen. Viele der hier untersuchten Systeme weisen ein effektives Projektil-Oberfläche-Potential auf, dessen Äquipotentialflächen im relevanten Energiebereich sinusförmig sind. Die möglichen Abweichungen durch die Näherung des Potentials durch eine harte Wand werden in Abschn. 2.3.7 diskutiert. Bei der Beschreibung der Beugung von Atomen mit thermischen Energien an Oberflächen zeigte sich die Harte-Wand-Näherung [139, 167, 169, 178–185] in vielen Fällen als sehr erfolgreich [70, 138, 164, 186–194]. Bis auf wenige Ausnahmen, bei denen die „Weichheit“ des Potentials berücksichtigt wurde [84, 195–197], sind die experimentellen Daten aus der Streuung

thermischer Atome in Harte-Wand-Näherung analysiert worden. Wegen der exponentiellen Abhängigkeit des Projektil-Oberfläche-Potentials vom Abstand z zur Oberfläche sollte die Harte-Wand-Näherung für die Streuung schneller Atome sogar eine bessere Näherung sein, als für die Streuung mit thermischen Energien.

Ein zweidimensionales Harte-Wand-Potential ist definiert durch

$$\begin{aligned} V(z) &= \infty & \text{für } z < \tilde{z}(x) \\ &= 0 & \text{sonst} \end{aligned} \quad (2.47)$$

wobei z die Richtung senkrecht zur Oberfläche ist. Für ein sinusförmiges Potential ist

$$\tilde{z}(x) = \frac{\Delta z}{2} \cos\left(x \frac{2\pi}{d}\right) \quad (2.48)$$

wobei x die Koordinate senkrecht zu z und zur kristallographischen Richtung des betrachteten Gitterführungschanals ist. Für ein Potential in dieser Harte-Wand-Näherung entspricht die Periode d der Breite des Gitterführungschanals und Δz der vollen Korrugation, d.h. dem senkrechten Abstand zwischen dem Maximum bei $x=0$ und dem Minimum bei $x=d/2$ der zur betrachteten Energie $V(x, z) = E_{\perp}$ korrespondierenden Äquipotentialfläche.

Vorteile dieser Näherung sind, dass sie analytisch zu behandeln ist und eine einfache Interpretation der im Experiment beobachteten Beugungseffekte in semiklassischer Näherung erlaubt. In den folgenden Abschnitten wird zunächst das Streuproblem analytisch gelöst und die abgeleiteten Funktionen mit der quantenmechanisch exakten Lösung sowie mit einer weiteren semiklassischen Lösung verglichen, um deren Gültigkeit zu zeigen.

2.3.4.1 Klassische Lösung

Der Ablenkwinkel θ einer Trajektorie mit Stoßparameter x bei der Reflexion an der harten Wand Gl. (2.48) ist bei senkrechtem Einfallswinkel (in der x - z -Ebene) genau der doppelte Winkel bezüglich der Normalen am Punkt (x, \tilde{z}) . Somit gilt

$$\tan\left(\frac{\theta}{2}\right) = -\frac{d\tilde{z}(x)}{dx} = \sin\left(x \frac{2\pi}{d}\right) \frac{\pi}{d} \Delta z \quad (2.49)$$

Die Ablenkfunktion ergibt sich damit zu

$$\theta(x) = 2 \arctan\left(\frac{\Delta z}{d} \pi \sin\left(x \frac{2\pi}{d}\right)\right) \quad (2.50)$$

In Abb. 2.11 ist diese Funktion für ein Verhältnis von Korrugation zu Periodizität von $\Delta z/d = 0,34/2,84 \approx 0,12$ (blaue Kurve) mit Stoßparameter x in Einheiten von d als blaue Kurve dargestellt. Die sinusförmige Wand hat

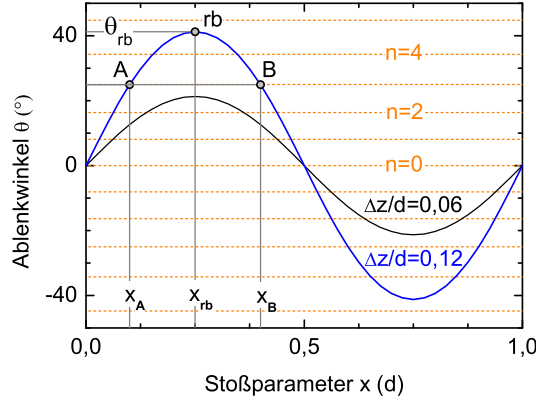


Abb. 2.11: Ablenkfunktion für eine sinusförmige harte Wand mit einem Verhältnis von Korrugation zu Periodizität von $\Delta z/d = 0,12$ (blaue Kurve) und $0,06$ (schwarze Kurve) nach Gl. (2.50) als Funktion des Stoßparameters x in Einheiten von d . Der Punkt rb repräsentiert die Trajektorie mit maximalem Ablenkwinkel θ_{rb} . Zwei Trajektorien A und B mit gleichem Ablenkwinkel θ aber unterschiedlichen Stoßparametern x_A bzw. x_B sind markiert. Die grau gestrichelten Geraden zeigen die nach Bragg-Bedingung Gl. (2.62) bei $d = 2,84 \text{ \AA}$ und $\lambda_{dB\perp} = 0,4 \text{ \AA}$ erlaubten Winkel an.

ihre größte Neigung bei $x_{rb} = d/4$. Der maximale Ablenkwinkel, der den klassischen Regenbogenwinkel definiert, ist demnach [111, 149]

$$\theta_{rb} = \pm 2 \arctan \left(\frac{\Delta z}{d} \pi \right) \quad (2.51)$$

Eine Gerade, die vom Punkt $(x_{rb} = d/4, \tilde{z}(x_{rb}) = 0)$ ausgeht, tangiert die sinusförmige Wand bei $x \approx 0,965d$. Daraus ergibt sich ein maximaler Regenbogenwinkel von $\theta_{rb} \approx 79,5^\circ$ und eine Grenze von $\Delta z/d < 0,2648$ für einfache Reflexion. Die klassische Intensität ist proportional zum klassischen differentiellen Wirkungsquerschnitt [111, 143, 149]

$$\sigma_{kl} = \left| \frac{d\theta}{dx} \right|^{-1} \quad (2.52)$$

Berücksichtigt man einen Faktor 2 für die Trajektorien mit gleichem Ablenkwinkel aus dem symmetrisch äquivalenten konkaven Bereich der gewellten Wand, dann ergibt sich daraus die auf d normierte klassische Intensität [149, 198]

$$I_{kl}(\theta) = \sigma_{kl} = \frac{1 + \tan^2 \left(\frac{\theta}{2} \right)}{2\pi \sqrt{(\pi \Delta z/d)^2 - \tan^2 \left(\frac{\theta}{2} \right)}} \quad (2.53)$$

In Abb. 2.7b ist die Intensität nach Gl. (2.53) für $d = 2,84 \text{ \AA}$ und $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$ dargestellt (blaue Strich-Punkt-Kurve). Diese klassische Lösung läuft für

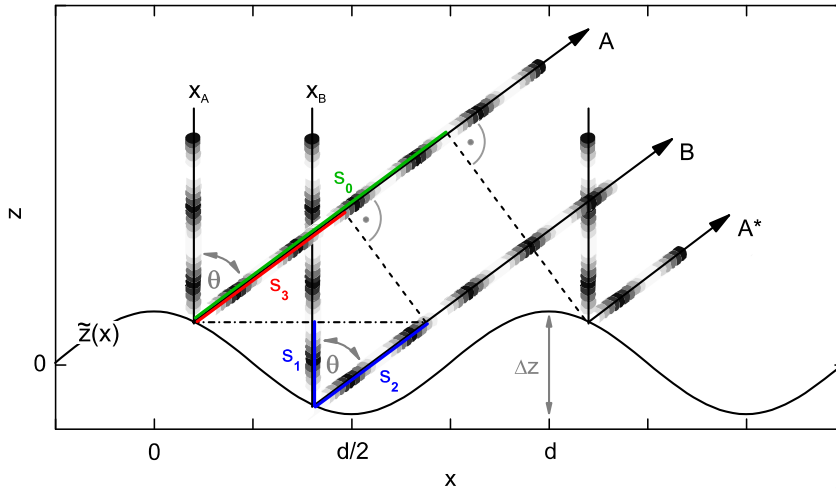


Abb. 2.12: Skizze der Interferenz von klassischen Trajektorien bei Streuung von Atomen an einer sinusförmigen harten Wand mit der Korrugation Δz und Periodizität d . Trajektorie A , A^* und B haben den gleichen Ablenkwinkel θ . A und A^* sind symmetrisch äquivalent. Die Schattierung symbolisiert die Phase der Materiewelle. s_0 ist der Gangunterschied zwischen A und A^* , $s_1 + s_2 - s_3$ der Gangunterschied zwischen A und B bis zur senkrecht zur Ausbreitungsrichtung liegenden gemeinsamen Phasenfläche (gestrichelte Geraden).

$\theta \rightarrow \theta_{rb}$ gegen ∞ und ist für $\theta > \theta_{rb}$ null. In Analogie zum atmosphärischen Regenbogen spricht man daher bei $|\theta| < \theta_{rb}$ von der „hellen“ bzw. bei $|\theta| > \theta_{rb}$ von der „dunklen“ Seite des klassischen Regenbogens. Wie in der Descartesschen Theorie des atmosphärischen Regenbogens in Abb. 2.7a tritt die Singularität bei θ_{rb} nur in der klassischen Rechnung auf. In der quantenmechanisch korrekten Beschreibung ist die Intensität bei θ_{rb} endlich und klingt auf der klassisch verbotenen dunklen Seite exponentiell ab. Auf diesen Unterschied wird in Abschn. 2.3.4.3 noch eingegangen. Die Intensität nach Gl. (2.53) läuft zwar für $\theta \rightarrow \theta_{rb}$ gegen ∞ , erfüllt aber dennoch die Teilchenzahlerhaltung

$$\int_{-\theta_{rb}}^{\theta_{rb}} I_{kl}(\theta) d\theta = 1 \quad (2.54)$$

2.3.4.2 Primitiv semiklassische Lösung

Die Ablenkfunktion in Abb. 2.11 zeigt, dass es für alle Ablenkwinkel mit $|\theta| < \theta_{rb}$ jeweils zwei verschiedene Trajektorien A und B mit gleichem θ aber unterschiedlichen Stoßparametern x_A und x_B gibt. Es ist also nicht unterscheidbar, welchen der beiden Wege ein Projektil genommen hat, das unter dem Ablenkwinkel θ detektiert wird. Betrachtet man das einfallende Projektil-Atom als ebene Materiewelle, dann ergibt sich zwischen den beiden

interferierenden Trajektorien A und B ein Phasenunterschied. In Abb. 2.12 sind zwei solche Trajektorien bei der Reflexion an der sinusförmigen harten Wand skizziert. Die Schattierung symbolisiert die semiklassische Phase der Materiewelle. A und B durchlaufen von der Strich-Punkt-Linie bis zur gestrichelt eingezeichneten senkrecht zur Ausbreitungsrichtung liegenden Phasenfläche die unterschiedlich langen Wege $s_1 + s_2$ bzw. s_3 . Dieser Gangunterschied führt zu einer von θ abhängigen Phasenverschiebung $\Delta\varphi = \varphi_B - \varphi_A$ und damit zu einem Interferenzmuster in der Intensitätsverteilung $I(\theta)$ der gestreuten Atome.

Zur Berechnung der Interferenzmuster wird hier die semiklassische Theorie von Avrin und Merrill [143] für Streuung von Atomen an einem sinusförmigen Potential verwendet. Die semiklassische Phase ist dabei durch das Integral des klassischen Impulses p entlang des Weges s der Trajektorie j gegeben

$$\varphi_j = \frac{1}{\hbar} \int_j p(s) ds - \eta \frac{\pi}{2} = \int_j k(s) ds - \eta \frac{\pi}{2} \quad (2.55)$$

Im Unterschied zur Phase eines freien Teilchens nach Gl. (2.36) ist hier die Phasenkorrektur $\eta\pi/2$ zu beachten. Sie spiegelt den Phasensprung wider, den eine Welle beim Durchqueren eines Fokus erfährt. Dabei ist η der sogenannte Maslov-Index, der die Anzahl der Kreuzungen mit der benachbarten Trajektorie mit geringfügig anderem Stoßparameter angibt. Für eine eindimensional korrigierte Fläche ist $\eta = 1$, wenn die Fläche konkav und $\eta = 0$, wenn sie konvex gekrümmt ist. Für die sinusförmige harte Wand ist daher $\eta = 0$ für alle Trajektorien vom Typ A und $\eta = 1$ für alle vom Typ B .

Dieser Phasensprung ist nicht mit dem Phasensprung zu verwechseln, der bei der Reflexion einer Welle am Umkehrpunkt auftritt. Man unterscheidet die „reflexionsinduzierte“ und „begrenzungsinduzierte“ Phasenverschiebung [199]. Erstere tritt am Umkehrpunkt auf und beträgt bei einer harten Wand $-\pi$ und $-\pi/2$ für ein weiches Potential. Von dieser Phasenverschiebung sind die interferierenden Trajektorien A und B gleichermaßen betroffen, sodass sich deren Phasendifferenz $\Delta\varphi$ dadurch nicht ändert. Eine begrenzungsinduzierte Phasenverschiebung tritt z.B. auf, wenn ein Teilchen ein dünnes Rohr oder zwei parallele Platten ohne Wechselwirkung der Wand durchquert [200, 201], oder wenn eine Welle einen Fokus durchläuft. Der zweite Fall ist in der Optik als Gouy-Phasenverschiebung bekannt [202–204]. Sie ist die Phase, die ein konvergierender elektromagnetischer Strahl gegenüber einer ebenen Welle verliert [203]. Für Zylinderwellen (Strichfokus) beträgt sie $\pi/2$ und für Kugelwellen (Punktfokus) π . Dieser Effekt resultiert aus der Änderung des Raums, der für die Ausbreitung des Photons zur Verfügung steht. Obwohl es keine körperlichen Begrenzungen gibt, wird das Photon im Fokus senkrecht zu seiner Ausbreitungsrichtung eingeschlossen [202]. Dieser Phasensprung wurde erstmals 1890 von Gouy beobachtet. Er tritt bei jeder Art von Wellen auf, auch bei Schallwellen. Feng *et al.* [203] konnten zeigen,

dass man die Gouy-Phasenverschiebung für jede Art fokussierten Strahl aufgrund der räumlichen Begrenzung aus der Unschärferelation ableiten kann. Paz *et al.* [204] leiteten die Gouy-Phasenverschiebung für einen fokussierten Atomstrahl ab, wobei sie die formale Ähnlichkeit der Gleichungen der Wellenoptik mit der Schrödinger-Gleichung ausnutzten. Wenn der Atomstrahl nur in einer Dimension fokussiert wird, ähnlich einer Zylinderlinse in der Optik, dann erfährt die Wellenfunktion des Atoms eine Änderung um $\pi/2$ [204]. Diese Art der Fokussierung tritt auch bei der Reflexion einer ebenen Welle am konkav gekrümmten Bereich einer sinusförmigen harten Wand auf.

In Abb. 2.13 sind zur Veranschaulichung die auslaufenden Trajektorien nach der Reflexion an einer sinusförmigen Wand mit $\Delta z/d = 0,2$ dargestellt. Während die Trajektorien vom Typ *B* (rot) einen Fokus durchlaufen und daher einen Phasensprung erleiden, schneiden sich die Trajektorien vom Typ *A* nicht. Daraus ergibt sich die zusätzliche Phasendifferenz $-\pi/2$ zwischen *A* und *B*. Diese Phasenverschiebung kann auch unabhängig von deren theoretischer Begründung als eine empirische Korrektur aufgefasst werden, die nötig ist, um die semi-klassische Näherung mit den Ergebnissen der Wellenpaket-Rechnungen in Einklang zu bringen [205].

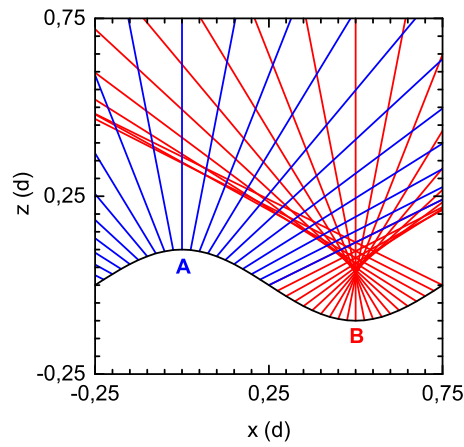


Abb. 2.13: Auslaufende Trajektorien vom Typ *A* (blau) und *B* (rot) nach Reflexion an einer sinusförmigen harten Wand mit $\Delta z/d = 0,2$ nach Gl. (2.50).

In Harte-Wand-Näherung mit $k = \text{konst} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$ ergibt sich die Phasendifferenz zwischen den Trajektorien vom Typ *A* und *B* aus Gl. (2.55) zu

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi}{\lambda_{\text{dB}\perp}} \left(\int_B ds - \int_A ds \right) - \frac{\pi}{2} = 2\pi \left(\frac{\Delta s}{\lambda_{\text{dB}\perp}} - \frac{1}{4} \right) \quad (2.56)$$

wobei Δs der Gangunterschied zwischen den beiden Trajektorien ist, mit $\Delta s = s_1 + s_2 - s_3$ aus Abb. 2.12. Die Trajektorie *A* trifft die Oberfläche am Punkt $(x_A, \tilde{z}(x_A))$. Da $\tilde{z}(x_A) = -\tilde{z}(x_B)$ ist $s_1 = 2\tilde{z} = s_2 \cos \theta$. Der zusätzliche Weg entlang der Trajektorie *B* gegenüber *A* beträgt somit $s_1 + s_2 = 2\tilde{z}(1 + 1/\cos \theta)$. Mit $x_B = d/2 - x_A$ ergibt sich der zusätzliche Weg entlang *A* aufgrund des Abstands der beiden parallel auslaufenden Trajektorien zu $s_3 = (d/2 - 2|x_A| + 2\tilde{z} \tan |\theta|) \sin |\theta|$. Der Gangunterschied zwischen den beiden möglichen Wegen *A* und *B* mit dem gleichen finalen Ablenkwin-

kel θ ist damit

$$\Delta s(\theta) = 2\tilde{z} \left(1 + \frac{1}{\cos \theta} \right) - \left(\frac{d}{2} - 2|x_A| + 2\tilde{z} \tan |\theta| \right) \sin |\theta| \quad (2.57)$$

Der Stoßparameter x_A der Trajektorie A ergibt sich durch Umstellen von Gl. (2.50) zu

$$x_A(\theta) = \arcsin \left(\frac{d}{\Delta z \pi} \tan \frac{\theta}{2} \right) \frac{d}{2\pi} \quad (2.58)$$

Die Position \tilde{z} , bei der die Trajektorie die harte Wand trifft, ergibt sich durch Einsetzen von Gl. (2.58) in Gl. (2.48) zu

$$\tilde{z}(\theta) = \frac{\Delta z}{2} \sqrt{1 - \left(\frac{d}{\Delta z \pi} \right)^2 \tan^2 \left| \frac{\theta}{2} \right|} \quad (2.59)$$

Setzt man Gl. (2.58) und Gl. (2.59) in Gl. (2.57) ein, erhält man einen analytischen Ausdruck für den Wegunterschied Δs als Funktion des Ablenkwinkels θ , der von den Parametern Δz und d abhängt. Wird diese Funktion in Gl. (2.56) eingesetzt, dann ergibt sich die Phasendifferenz $\Delta\varphi(\theta)$ mit $\lambda_{\text{dB}\perp}$ als weiterem Parameter.

In Abb. 2.14a ist die Phasendifferenz $\Delta\varphi$ zwischen den beiden unterschiedlichen Trajektorien vom Typ A und B nach Gl. (2.56) mit Gl. (2.57) als Funktion von θ für ^4He (blau) und ^3He (schwarz) bei gleicher Senkrechterenergie $E_\perp = 1 \text{ eV}$ aufgetragen. Die Korrugation der sinusförmigen Wand wurde für dieses Beispiel zu $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$ und die Periodizität zu $d = 2,84 \text{ \AA}$ gewählt, womit die Parameter den Werten aus dem später in Abschn. 5.1 besprochenen Experiment zur Streuung von He-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung entsprechen. Die Phasendifferenzen $\Delta\varphi(\theta)$ von ^4He und ^3He unterscheiden sich, da die beiden Isotope unter sonst gleichen Bedingungen aufgrund ihrer unterschiedlichen Masse M nach Gl. (2.34) verschiedene De-Broglie-Wellenlängen $\lambda_{\text{dB}\perp}$ aufweisen. Die relative Intensität unter einem bestimmten Ablenkwinkel θ ergibt sich dann durch Einsetzen von $\Delta\varphi(\theta)$ in Gl. (2.40) unter Berücksichtigung des klassischen differentiellen Wirkungsquerschnitts σ nach Gl. (2.53).

In Abb. 2.14c ist eine für ^3He berechnete semiklassische Intensitätsverteilung (rot gestrichelte Kurve) der nach Gl. (2.53) berechneten klassischen Intensitätsverteilung (schwarze Kurve) gegenübergestellt. Während die klassische Intensität nur die beiden Maxima bei θ_{rb} aufweist, zeigt die semiklassische Intensität nach Gl. (2.40) immer dann ein Maximum, wenn $\Delta\varphi$ ein gerades Vielfaches von π ist (volle Symbole in Abb. 2.14a) und ein Minimum, wenn $\Delta\varphi$ ein ungerades Vielfaches von π ist (offene Symbole).

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_m^{\text{max}} &= 2m\pi \\ \Delta\varphi_m^{\text{min}} &= (2m - 1)\pi \quad m \in \mathbb{N} \end{aligned} \quad (2.60)$$

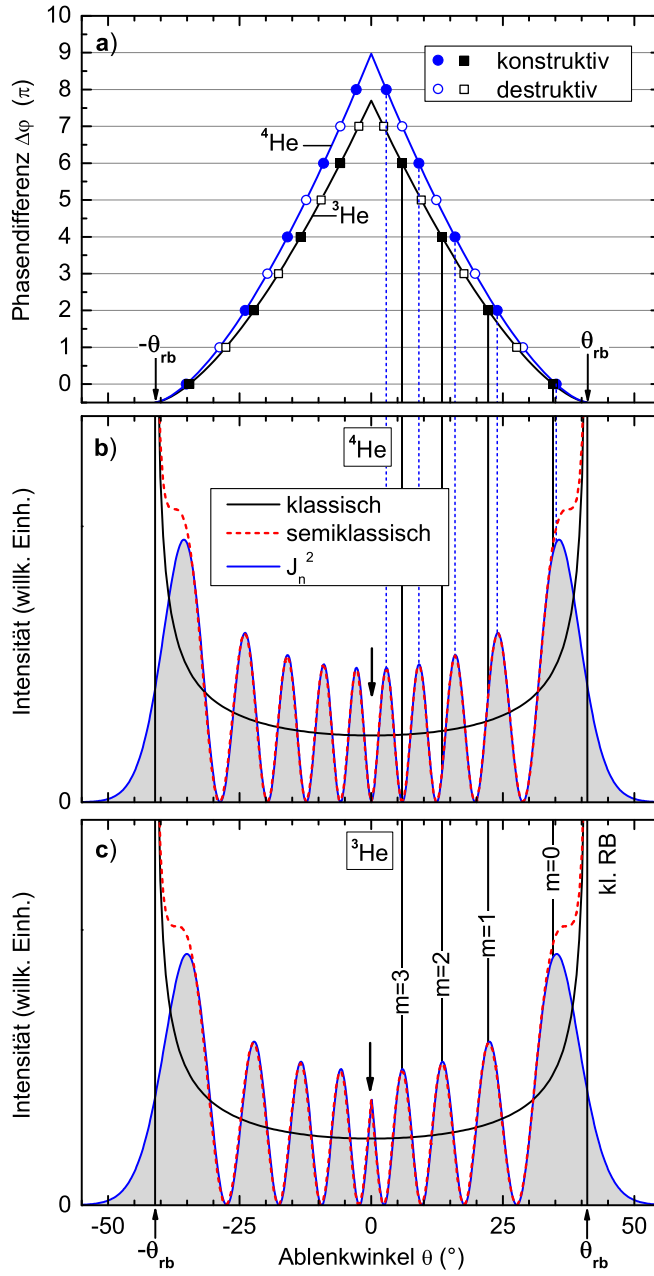


Abb. 2.14: Reflexion von ^4He - und ^3He -Atomen mit $E_{\perp} = 1 \text{ eV}$ an einer sinusförmigen harten Wand mit $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$ und $d = 2,84 \text{ \AA}$. **a)** Phasendifferenz $\Delta\varphi$ zwischen den beiden Trajektorien vom Typ A und B (Abb. 2.12) nach Gl. (2.56) mit Gl. (2.57) für ^4He (blau) und ^3He (schwarz). **b)** Relative Intensität nach klassischer Berechnung mit Gl. (2.53) (schwarze Kurve), semiklassischer Rechnung nach Gl. (2.40), (2.56) und (2.57) (rot gestrichelte Kurve) sowie der Lösung basierend auf dem Quadrat der Bessel-Funktion J_n^2 nach Gl. (2.79) (blaue Kurve) für ^4He . **c)** Wie b), jedoch für ^3He . Die Ordnung m eines überzähligen Regenbogens korrespondiert zum Vielfachen von 2π in $\Delta\varphi$ (schwarze bzw. blau gestrichelte vertikale Linien).

Die entsprechenden Werte sind in Abb. 2.14a für $\Delta\varphi_m^{\min}$ als offene Symbole und für $\Delta\varphi_m^{\max}$ als volle Symbole dargestellt. In Analogie zum atmosphärischen Regenbogen bei Streuung von Licht an Wassertropfen (Abschn. 2.3.1) werden die Maxima für $m \geq 1$ überzählige Regenbögen genannt, während das Hauptmaximum für $m = 0$ dem Regenbogen entspricht. Man beachte, dass wegen des oben diskutierten Phasensprungs, die Phasendifferenz am klassischen Regenbogen θ_{rb} in primitiv semiklassischer Näherung $-\pi/2$ beträgt. Das klassische Regenbogen-Maximum (kl. RB) fällt daher nicht genau mit dem Maximum für $m = 0$ zusammen. Darauf wird u.a. in Abschn. 2.3.5 genauer eingegangen.

In Abb. 2.14b ist die semiklassische Intensität für die in Abb. 2.14a gezeigte Phasendifferenz für ^4He dargestellt. Aufgrund der verschiedenen De-Broglie-Wellenlängen $\lambda_{\text{dB}\perp}$ unterscheiden sich die zu $\Delta\varphi_m^{\min}$ und $\Delta\varphi_m^{\max}$ korrespondierenden Ablenkwinkel θ für ^3He (Quadrate) und ^4He (Kreise). Daher unterscheiden sich auch die semiklassischen Intensitäten von ^3He und ^4He in Anzahl und Ort der auftretenden Maxima. Die klassische Intensität ist hingegen für beide He-Isotope identisch. Zum Vergleich wurden die Winkelpositionen der Maxima mit $\theta > 0$ durch vertikale Linien markiert (^4He : blau gestrichelt, ^3He : schwarz). Während ^4He insgesamt 10 Maxima zeigt, treten bei ^3He nur 9 auf. Der experimentelle Nachweis dieses Isotopeneffektes wird in Abschn. 5.1.8 beschrieben. Er war entscheidend, um zu zeigen, dass es sich bei den experimentell beobachteten Interferenzmustern tatsächlich um Beugung von Atomen mit Energien von $E_0 > 10 \text{ keV}$ handelt.

Das Interferenzmuster ist über Gl. (2.57), (2.58) und (2.59) von der Periodizität d und der Korrugation Δz des sinusförmigen Potentials abhängig, analog zur Abhängigkeit der überzähligen Regenbögen des atmosphärischen Regenbogens von der Größe der Regentropfen (Abb. 2.6). Daher kann aus den Interferenzmustern das Potential bzw. der Radius der Regentropfen bestimmt werden. Die unterschiedlichen Ablenkwinkel bei unterschiedlichem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ entsprechen den Farben des atmosphärischen Regenbogens.

Aufgrund der Symmetrie der Oberfläche gibt es noch die zu A und B symmetrisch äquivalenten Wege aus den benachbarten Einheitszellen, die ebenfalls zur Intensität unter dem gleichen Ablenkwinkel θ beitragen können. In Abb. 2.12 ist eine zu A symmetrisch äquivalente Trajektorie A^* mit Stoßparameter $x_A + d$ skizziert. Für konstruktive Interferenz muss der Gangunterschied $s_0 = d \sin \theta$ einem Vielfachen der Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ entsprechen. Dies führt auf die Bragg-Bedingung

$$\sin \theta = \frac{n}{d} \lambda_{\text{dB}\perp} \quad (2.61)$$

wobei $n \in \mathbb{Z}$ die Beugungsordnung des entsprechenden Bragg-Reflexes ist. Damit ergeben sich die Bragg-Winkel zu

$$\theta_n = \arcsin \left(\frac{n}{d} \lambda_{\text{dB}\perp} \right) = \arcsin \left(\frac{n}{d} \frac{h}{\sqrt{2ME_{\perp}}} \right) \quad (2.62)$$

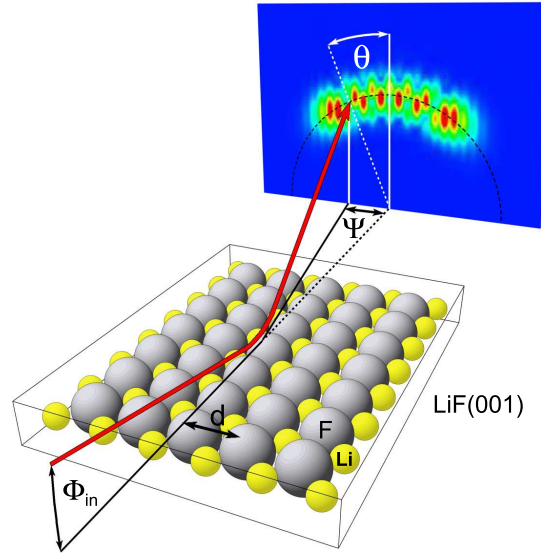


Abb. 2.15: Skizze der Geometrie für Streuung von Atomen an den $\langle 110 \rangle$ -Atomketten einer LiF(001)-Oberfläche, die wie ein Beugungsgitter mit Gitterkonstante d wirken. Bezeichnungen der Winkel wie in Abb. 2.2. Die skizzierte Trajektorie (rot) ist nicht maßstabsgetreu. Zur Veranschaulichung ist auf der Detektionsebene (blau) eine Intensitätsverteilung gezeigt. Gestrichelte Kurve: Kreis elastisch gestreuter Projektile.

In Abb. 2.11 sind die Bragg-Winkel θ_n für $d = 2,84 \text{ \AA}$ und $\lambda_{dB\perp} = 0,4 \text{ \AA}$ als orange gestrichelte Linien markiert. Nur an den Positionen, an denen die Ablenkfunktion mit einem Bragg-Winkel übereinstimmt, können die beiden Trajektorien vom Typ A und B auch konstruktiv interferieren. Die mit A und B gekennzeichneten Punkte gehören z.B. zur Beugungsordnung $n = 3$. Die Quanten-Ablenkfunktion [206] aus einer entsprechenden Rechnung basierend auf Quanten-Trajektorien ähnelt einer Stufenfunktion, deren Stufen den Bragg-Winkeln entsprechen (Fig. 1 in Ref. [206]).

Bei gegebenem $\lambda_{dB\perp}$ sind die Bragg-Winkel θ_n nur von der Periodizität d des Potentials abhängig, nicht jedoch von dessen Form. Andererseits bestimmt die von der Korrugation Δz abhängende Ablenkfunktion, bis zu welcher Ordnung die Projektile gestreut werden können, da $|\theta_n| < \theta_{rb}$. Die schwarze Kurve in Abb. 2.11 ist die Ablenkfunktion nach Gl. (2.50) für ein mit $\Delta z/d = 0,06$ im Vergleich zur blauen Kurve schwächer korrigiertes Potential. Während bei $\Delta z/d = 0,12$ Projektile bis zur Ordnung $n = 4$ abgelenkt werden, erreichen sie bei $\Delta z/d = 0,06$ nur $n = 2$. Dieser Effekt hat eine Analogie in der Optik. In Monochromatoren werden häufig sogenannte Blaze- bzw. Echelette-Gitter eingesetzt [207, 208]. Dies sind Reflexionsgitter, deren reflektierende Oberfläche eine Sägezahnform aufweist, um möglichst viel Intensität in höhere Beugungsordnungen zu lenken. Bei herkömmlichen

Gittern gelangt der Hauptanteil der Intensität in die nullte Ordnung und bleibt damit ungenutzt. In diesem Sinne sorgt die Korrugation des Potentials dafür, dass bei der Streuung von Atomen an Oberflächen auch höhere Beugungsordnungen „ausgeleuchtet“ werden. Ist die Korrugation zu gering, sodass bereits $|\theta_{n=1}| \gtrsim \theta_{rb}$, dann tritt nur die nullte Beugungsordnung auf.

Obwohl die Betrachtung der Bewegung der Projektile in der Ebene senkrecht zur jeweiligen Gitterführungsrichtung mit E_{\perp} im Bereich von eV ausreicht, um die Ablenkwinkel zu berechnen, findet der Streuprozess dennoch bei Projektilenergien E_0 im Bereich von keV statt. Die Bragg-Bedingung Gl. (2.61) kann daher auch bezüglich der zu E_0 korrespondierenden De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} und des azimuthalen Austrittswinkels Ψ formuliert werden. Mit $\lambda_{dB\perp} = \lambda_{dB} \sin \Phi_{in}$ aus Gl. (2.34) und $\sin \theta = \sin \Psi / \sin \Phi_{in}$ aus Gl. (2.22) lautet sie

$$\sin \Psi_n = \frac{n}{d} \lambda_{dB} \quad (2.63)$$

Zur Veranschaulichung ist in Abb. 2.15 die Geometrie für Streuung von Atomen entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung einer LiF(001)-Oberfläche skizziert. Die rot eingezeichnete Trajektorie (nicht maßstabsgetreu) soll den Zusammenhang zwischen Ablenkwinkel θ , azimuthalem Austrittswinkel Ψ und Einfallswinkel Φ_{in} verdeutlichen (vergl. Abb. 2.2). Die Atomketten der Oberfläche wirken wie ein Beugungsgitter mit der Gitterkonstante d . Da die De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} für schnelle Atome zwei bis drei Größenordnungen kleiner ist als d , ist der Abstand zwischen den Austrittswinkeln Ψ_n klein. Aufgrund der hohen Winkelauflösung sind die Beugungsordnungen dennoch zu trennen. Zur Illustration ist auf der Detektionsebene (blau) ein Beugungsmuster abgebildet. Während die Position der Beugungsmaxima aufgrund der Interferenz zwischen den symmetrisch äquivalenten Trajektorien vom Typ A und A^* nur von d abhängt, wird deren relative Intensität durch die Interferenz zwischen den Trajektorien vom Typ A und B bestimmt. Die Trajektorien A und A^* in Abb. 2.12 interferieren z.B. konstruktiv, doch da A und B destruktiv interferieren, weist die entsprechende Beugungsordnung keine Intensität auf.

Die Phasenbeziehung (Gl. (2.56)) und damit die Intensität einer Beugungsordnung n ist von der De-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB\perp}$ abhängig. Um die relative Intensität der Beugungsordnung n als Funktion von $\lambda_{dB\perp}$ zu berechnen, muss in Gl. (2.57), (2.58), (2.59) und (2.53) die Bragg-Bedingung berücksichtigt werden. Die Stoßparameter der Trajektorien, welche die Bragg-Bedingung erfüllen und damit zur Intensität unter dem Bragg-Winkel θ_n beitragen, ergeben sich aus Gl. (2.58) mit Gl. (2.62) zu

$$x_{nA}(\lambda_{dB\perp}) = \arcsin \left(\frac{d}{\Delta z \pi} \sqrt{\frac{2}{1 + \varepsilon_n} - 1} \right) \frac{d}{2\pi} \quad (2.64)$$

mit

$$\varepsilon_n = \cos \theta_n = \sqrt{1 - \left(\frac{n}{d} \lambda_{\text{dB}\perp}\right)^2} \quad (2.65)$$

Die Positionen, an denen diese Trajektorien die sinusförmige harte Wand treffen, ergeben sich mit

$$\tan^2 \left(\frac{\theta_n}{2} \right) = \frac{2}{1 + \cos \theta_n} - 1 = \frac{2}{1 + \varepsilon_n} - 1 \quad (2.66)$$

aus Gl. (2.59) zu

$$\tilde{z}_n(\lambda_{\text{dB}\perp}) = \frac{d}{2\pi} \sqrt{1 + \left(\frac{\Delta z \pi}{d}\right)^2 - \frac{2}{1 + \varepsilon_n}} \quad (2.67)$$

Der Gangunterschied zwischen den beiden Trajektorien vom Typ *A* und *B*, die gleichzeitig die Bragg-Bedingung erfüllen, ergibt sich dann durch Einsetzen von Gl. (2.67), (2.64), (2.65) und (2.61) in Gl. (2.57) zu

$$\begin{aligned} \Delta s_n(\lambda_{\text{dB}\perp}) = & \sqrt{1 - \frac{2}{1 + \varepsilon_n} + \left(\frac{\Delta z \pi}{d}\right)^2} \left(\frac{d}{\pi} \left(1 + \frac{1}{\varepsilon_n}\right) - \frac{(n \lambda_{\text{dB}\perp})^2}{\pi d \varepsilon_n} \right) \\ & - \frac{|n| \lambda_{\text{dB}\perp}}{\pi} \left(\frac{\pi}{2} - \arcsin \left(\frac{d}{\Delta z \pi} \sqrt{\frac{2}{1 + \varepsilon_n} - 1} \right) \right) \end{aligned} \quad (2.68)$$

Der klassische differentielle Wirkungsquerschnitt σ_n für Streuung unter einem Bragg-Winkel θ_n ergibt sich mit Gl. (2.66) aus Gl. (2.53) zu

$$\sigma_n(\lambda_{\text{dB}\perp}) = \frac{1}{(\varepsilon_n + 1)\pi} \left(1 + \left(\frac{\pi \Delta z}{d}\right)^2 - \frac{2}{\varepsilon_n + 1} \right)^{-1/2} \quad (2.69)$$

Mit Gl. (2.40) und Gl. (2.56) ergibt sich die relative Intensität der Beugungsordnungen n zu

$$I_n(\lambda_{\text{dB}\perp}) = \sigma_n \left(1 + \cos \left\{ \left(\frac{\Delta s_n}{\lambda_{\text{dB}\perp}} - \frac{1}{4} \right) 2\pi \right\} \right) \quad (2.70)$$

In Abb. 2.16 sind die relativen Intensitäten der Beugungsordnungen n nach Gl. (2.70) mit den gleichen Parametern wie für Abb. 2.14b als offene schwarze Balken dargestellt. Zum Vergleich ist die entsprechende Kurve aus der Rechnung ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung aus Abb. 2.14b als schwarz gestrichelte Kurve eingezeichnet. Die Beugungsordnungen $n = 1$, $n = 3$ und $n = 8$ weisen relativ hohe Intensitäten auf, da sie jeweils mit dem Maximum des überzähligen Regenbogens $m = 4$, $m = 3$ und $m = 1$ zusammenfallen, während $n = 0$ und $n = 2$ keine Intensität aufweisen. $n = 13$ fällt mit dem Regenbogen zusammen und ist daher am intensivsten. Da

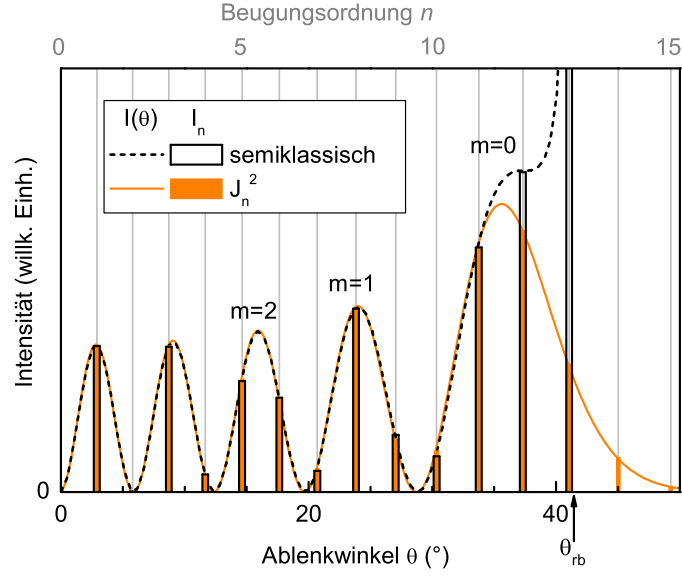


Abb. 2.16: Relative Intensität der Beugungsordnungen n bei der Reflexion von ^4He -Atomen mit $E_{\perp} = 1 \text{ eV}$ an einer sinusförmigen harten Wand mit $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$ und $d = 2,84 \text{ \AA}$. Schwarze offene Balken: semiklassische Rechnung I_n nach Gl. (2.70). Gestrichelte Kurve: semiklassische Rechnung ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung $I(\theta)$ (identisch mit der rot gestrichelten Kurve aus Abb. 2.14b). Orange Kurve/ orange Balken: Lösung basierend auf dem Quadrat der Bessel-Funktion J_n^2 nach Gl. (2.79) bzw. Gl. (2.77).

die überzähligen Regenbögen die Intensität der Beugungsmaxima bestimmen, wird das charakteristische Muster aus schwachen und intensiven Beugungsordnungen „Quanten-Regenbogen“ genannt [139, 188, 206]. Wird die De-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ verringert, dann werden die Bragg-Winkel θ_n kleiner, während sich die Maxima der überzähligen Regenbögen zu größeren Ablenkwinkeln verschieben. Daher oszilliert die Intensität jeder Beugungsordnung n mit $\lambda_{\text{dB}\perp}$.

Aus der Teilchenzahlerhaltung ergibt sich die Forderung, dass die Intensität aller Beugungsstrahlen der einfallenden Intensität entsprechen muss, bzw. dass ein einzelnes Projektil mit Wahrscheinlichkeit 1 unter irgendeinem der erlaubten Winkel θ_n gestreut wird, sodass

$$\sum_n I_n = 1 \quad (2.71)$$

Diese Bedingung wird Unitarität genannt. Sie ist das Äquivalent zu Gl. (2.54) aus der klassischen Rechnung. Die primitiv semiklassische Intensität I_n erfüllt diese Bedingung nicht und ist auch nicht mit Gl. (2.71) normierbar, da wegen der Singularität am Regenbogen $I_n = \infty$, wenn $\theta_n(\lambda_{\text{dB}\perp}) = \theta_{\text{rb}}$. Die Anzahl „ausgeleuchteter“ Beugungsordnungen, unter denen sich die gesamte Intensität aufteilt, steigt mit sinkendem $\lambda_{\text{dB}\perp}$. Daher wird $I_n(\lambda_{\text{dB}\perp})$ über

die Anzahl der auftretenden Ordnungen normiert. Die höchste auftretende Ordnung mit $|\theta_n| \leq \theta_{rb}$ ist

$$n_{\max} \leq \frac{d}{\lambda_{dB\perp}} \sin \left\{ 2 \arctan \left(\frac{\Delta z \pi}{d} \right) \right\} \quad (2.72)$$

Da $n \in \mathbb{Z}$, ist $n_{\max}(\lambda_{dB\perp})$ eine Stufenfunktion. In der quantenmechanisch korrekten Beschreibungen der Intensität in der Umgebung des klassischen Regenbogens gibt es jedoch auch Maxima auf der klassisch verbotenen Seite des Regenbogens mit $|\theta_n| > \theta_{rb}$, die mit sinkendem $\lambda_{dB\perp}$ stetig anwachsen, je näher sie θ_{rb} kommen. Daher wird hier auf die mittlere Anzahl der Beugungsordnungen

$$N(\lambda_{dB\perp}) = 2 \frac{d}{\lambda_{dB\perp}} \sin \left\{ 2 \arctan \left(\frac{\Delta z \pi}{d} \right) \right\} \quad (2.73)$$

mit $N \in \mathbb{R}$ normiert.

In Abb. 2.17 ist die so normierte Intensität I_n nach Gl. (2.70) für die Beugungsordnung a) $n=1$, b) $n=0$ und c) $n=2$ als Funktion der Wellenzahl $k = 2\pi/\lambda_{dB\perp}$ für Streuung an einer sinusförmigen harten Wand mit $\Delta z = 0,2d$ für $d = 1 \text{ \AA}$ dargestellt (blaue Strich-Punkt-Kurve). Diese aus der Interferenz klassischer Trajektorien analytisch abgeleitete Intensität stimmt sehr genau mit dem Ergebnis der quantenmechanisch exakten Rechnung (schwarz gepunktete Kurve) von Masel *et al.* [178] überein. Abweichungen zeigen sich nur im Bereich des Regenbogens $m=0$. Hier strebt die Intensität aufgrund der Singularität gegen ∞ . Die relative Intensität der Beugungsmaxima oszilliert in Abhängigkeit von k . Die Einhüllende dieser Oszillation fällt mit zunehmendem k , da die Anzahl der auftretenden Beugungsmaxima auf der hellen Seite des Regenbogens linear mit k zunimmt. Die Reihenfolge der Intensitätsmaxima entspricht der Reihenfolge der überzähligen Regenbögen m . Jedes Maximum m von $n=0$ ist gegenüber dem entsprechenden Maximum m von $n=1$ zu kleineren und von $n=2$ zu größeren k verschoben. Eine ähnliche Oszillation ergibt sich als Funktion der Korrugation Δz bei $\lambda_{dB\perp} = \text{konst}$ (hier nicht gezeigt), vergleichbar mit dem Ergebnis entsprechender Rechnungen zur Streuung von thermischen He-Atomen an einer harten Wand (Fig. 4.2 in Ref. [19] oder Fig. 3.5 in [17]).

Für die nullte Beugungsordnung, d.h. spekulare Reflexion mit $\theta = 0$, ist $x_A = 0$, $x_B = d/2$ und $\Delta s = 2\Delta z$. Aus Gl. (2.60) ergibt sich dann mit Gl. (2.56) die De-Broglie-Wellenlänge für das zum überzähligen Regenbogen m korrespondierende Maximum bzw. Minimum zu

$$\lambda_{dB\perp}^{\max} = \frac{2\Delta z}{m + 1/4} \quad \lambda_{dB\perp}^{\min} = \frac{2\Delta z}{m - 1/4} \quad (2.74)$$

Für $n=0$ ist die mit Gl. (2.73) normierte Intensität nach Gl. (2.70)

$$I_{n=0} \propto \lambda_{dB\perp} \left(1 + \cos \left\{ \left(\frac{2\Delta z}{\lambda_{dB\perp}} - \frac{1}{4} \right) 2\pi \right\} \right) \quad \lambda_{dB\perp} < \frac{8}{3}\Delta z \quad (2.75)$$

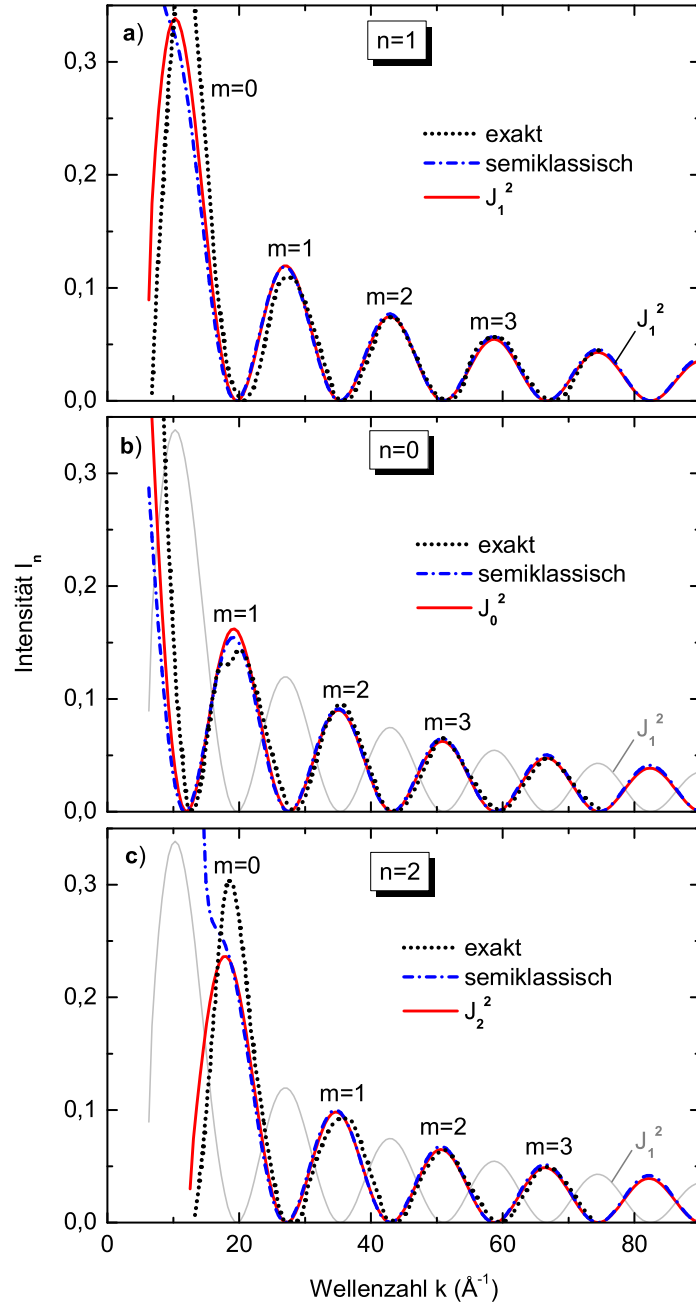


Abb. 2.17: Relative Intensität der Beugungsordnung a) $n = 1$, b) $n = 0$ und c) $n = 2$ als Funktion der Wellenzahl k aus semiklassischer Rechnung nach Gl. (2.70) (blaue Strich-Punkt-Kurve), quantenmechanisch exakter Rechnung (schwarz gepunktete Kurve) aus Ref. [178] und aus der analytischen Lösung basierend auf dem Quadrat der Bessel-Funktion J_n^2 nach Gl. (2.77) (rote Kurve) für Streuung an einer sinusförmigen harten Wand nach Gl. (2.48) mit $\Delta z = 0,2d$ für $d = 1 \text{ \AA}$. Die Ordnung m der Maxima entspricht der Ordnung m der überzähligen Regenbögen. Zur Hervorhebung der Verschiebung ist in b) und c) die Kurve für J_1^2 aus a) eingezeichnet.

Die primitiv semiklassische Näherung verliert im Grenzfall kleiner Korrugation und großer Wellenlänge ihre Gültigkeit, d.h. wenn $\lambda_{dB\perp} \rightarrow 2\Delta z$, beim Übergang zum Fall, wenn nur noch $n=0$ Intensität aufweist [162]. Für eine infinitesimal korrigierte harte Wand mit $\Delta z \rightarrow 0$ ergibt sich nach Gl. (2.56) eine Phasendifferenz von $-\pi/2$ zwischen den (fast) gleichen Trajektorien A und B . Die Näherung ist jedoch gut, wenn $\lambda_{dB\perp}$ klein gegenüber der Korrugation Δz ist. Aus der guten Übereinstimmung der primitiv semiklassischen Rechnung mit der quantenmechanisch exakten Intensität bis zum zu $m=1$ gehörenden Minimum in Abb. 2.17b kann mit Gl. (2.74) auf eine Grenze von $\lambda_{dB\perp} < (8/3)\Delta z$ für die Gültigkeit von Gl. (2.75) geschlossen werden.

Die Modulation der relativen Intensität der nullten Beugungsordnung mit $\lambda_{dB\perp}$ entspricht dem Glorie-Effekt bei binären Stößen von Atomen in der Gasphase [128, 163]. Der Wirkungsquerschnitt als Funktion der Relativgeschwindigkeit $v = h/M\lambda_{dB}$ beim Stoß zweier neutraler Atome zeigt für Streuung ohne Ablenkung $\theta=0$ eine Oszillationsstruktur. Diese ist auf die Interferenz zwischen Trajektorien vom Typ A_1 mit großem Stoßparameter r ohne Wechselwirkung und B_1 mit kleinem r , bei denen sich die Ablenkung im anziehenden und im abstoßenden Bereich des Potentials $V(r)$ gerade aufhebt, zurückzuführen. In Abb. 2.18 sind zwei entsprechende Trajektorien skizziert. Zusätzlich sind Trajektorien vom Typ A_2 und B_2 mit gleichem Ablenkwinkel θ eingezeichnet, durch deren Interferenz die Maxima der überzähligen Regenbögen bei der Messung der Intensität als Funktion von θ bei $\lambda_{dB} = \text{konst}$ entstehen. Dabei entspricht die Ordnung des überzähligen Regenbogens bei $\theta=0$ der Ordnung des Glorie-Maximum bei gleichem λ_{dB} [163]. In diesem Sinne sind die Maxima in Abb. 2.17b Glorien und die Ordnung m in Gl. (2.74) ist der Glorie-Index. Auf diesen Zusammenhang wird in Abschn. 2.3.5 nochmals eingegangen.

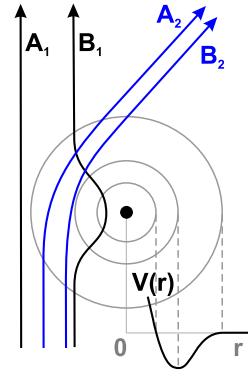


Abb. 2.18: Skizze Glorie-Effekt (Interferenz A_1 und B_1) und überzählige Regenbögen (Interferenz A_2 und B_2).

2.3.4.3 Die Lösung auf Basis von Besselfunktionen

Die im vorherigen Abschnitt dargestellte primitiv semiklassische Theorie liefert ein leicht verständliches Bild der physikalischen Ursachen für das Auftreten der Beugungserscheinungen bei Streuung von Atomen an Oberflächen. Die Voraussetzungen für die primitiv semiklassische Näherung sind jedoch nicht mehr erfüllt, wenn die beiden interferierenden klassischen Trajektorien zu dicht beieinander liegen und sie fast die gleiche Phase haben [122, 126, 162, 164–167], d.h. gerade in der Nähe des Regenbogenwinkels für

$\theta \approx \theta_{\text{rb}}$. Die in Abschn. 2.3.4.2 diskutierte zusätzliche Phasenverschiebung von $\pi/2$ führt zu einem Widerspruch bei $\theta = \theta_{\text{rb}}$. Die Theorie versagt also bei der Beschreibung des Regenbogens.

Um die Intensität auch in unmittelbarer Umgebung von θ_{rb} korrekt zu berechnen, kann die Ablenkfunktion an dieser Stelle durch eine Parabel genähert werden [126, 131, 133, 165, 209]. Die Intensität kann dann als Funktion basierend auf dem Quadrat der Airy-Funktion Ai^2 (siehe Abschn. 2.3.1) dargestellt werden. Diese „Airy-Näherung“ [131, 133] wird umso schlechter, je größer $|\theta - \theta_{\text{rb}}|$ ist [122, 127, 132]. Da die primitiv semiklassische Theorie abgesehen vom Regenbogen aber korrekt ist, muss nur die Intensität um θ_{rb} durch die Airy-Näherung ersetzt werden [165, 209].

Sogenannte „uniforme Näherungen“ [132, 162, 164, 166, 168–171] können die Intensität im gesamten Winkelbereich korrekt wiedergeben. Die Intensität um den singulären Punkt wird auch in diesen Näherungen durch Funktionen beschrieben, die auf Ai^2 basieren. Die uniforme Näherung von Berry [132, 162] und die primitiv semiklassische Rechnung stimmen bis auf die Intensität am Regenbogen exakt überein. Dort strebt die Intensität nicht gegen ∞ sondern zeigt ein endliches Maximum mit exponentiellem Abklingen zur dunklen Seite des Regenbogens (siehe Fig. 20 in Ref. [162]). Diese Näherung stimmt für Regenbogenstreuung bei binären Stößen zwischen neutralen Atomen im Bereich thermischer Energien sehr gut mit der exakten Rechnung [126] überein (siehe Fig. 4 in Ref. [132]).

Eine uniforme semiklassische Theorie zur Berechnung der Intensität bei Streuung von Atomen an einer sinusförmigen harten Wand ist die analytische Lösung von Garibaldi *et al.* [138, 139]. Diese Autoren folgten einer Theorie aus der Akustik von Lord Rayleigh zur Beschreibung der Reflexion von Schall an einer periodisch gewellten Wand. Der zugrunde liegende Ansatz wird auch Kirchhoff- oder Rayleigh-Eikonal-Näherung genannt und ist nur für nicht zu stark korrigierte Potentiale eine gute Approximation [167] (Korrugation $< 15\%$ der Gitterkonstante [70]). Die Intensität einer Beugungsordnung n wird in der Lösung von Garibaldi *et al.* durch das Quadrat von Bessel-Funktionen J_n beschrieben. Diese Lösung kann als Spezialfall des Formalismus mit Ai^2 von Berry betrachtet werden [132, 166]. Unter den Bedingungen für axiale Gitterführung – eindimensionale Korruptionsfunktion Gl. (2.65) und (in x-z-Ebene) senkrechter Einfallswinkel – reduziert sich die Lösung von Garibaldi *et al.* auf

$$I_n = J_n^2 \left(\frac{\Delta z \pi}{\lambda_{\text{dB}\perp}} (1 + \cos \theta_n) \right) \quad (2.76)$$

wobei I_n die Intensität des Bragg-Reflexes der Ordnung n und J_n die Bessel-Funktion der Ordnung n ist. Der Kosinus-Term kann über Gl. (2.65) ersetzt werden, sodass

$$I_n = J_n^2 \left(\frac{\Delta z \pi}{\lambda_{\text{dB}\perp}} \left(1 + \sqrt{1 - (n\lambda_{\text{dB}\perp}/d)^2} \right) \right) \quad (2.77)$$

Für die Ordnung $n = 1$, für die $\cos \theta \approx 1$ gilt, und für $n = 0$ vereinfacht sich Gl. (2.76) zu

$$I_0 = J_0^2 \left(\frac{\Delta z 2\pi}{\lambda_{dB\perp}} \right) \quad \text{und} \quad I_1 \approx J_1^2 \left(\frac{\Delta z 2\pi}{\lambda_{dB\perp}} \right) \quad (2.78)$$

In Abb. 2.17 wird die relative Intensität I_n nach Gl. (2.77) für $n = 1$, $n = 0$ und $n = 2$ als Funktion der Wellenzahl $k = 2\pi/\lambda_{dB\perp}$ für $\Delta z = 0,2d$ mit $d = 1 \text{ \AA}$ gezeigt (rote Kurve) und mit dem Ergebnis für die Interferenz klassischer Trajektorien (blaue Punkt-Strich-Kurve) verglichen. Die Intensitätsmodulation folgt sehr genau der Kurve aus der primitiv semiklassischen Rechnung, die Positionen der überzähligen Regenbögen m werden sehr genau wiedergegeben. Diese Übereinstimmung bleibt auch für andere Verhältnisse von $\Delta z/d$ erhalten. Die gute Übereinstimmung zwischen der quantenmechanisch exakten Rechnung aus Ref. [178] (schwarz gepunktete Kurve) und der Näherung mit J_n^2 hatten Masel *et al.* [179] bereits für $n = 0$ gezeigt. Für $n = 1$ und $n = 2$ ist die Übereinstimmung ebenfalls gut. Die Interferenz klassischer Trajektorien (Abschn. 2.3.4.2) und die analytische Lösung Gl. (2.76) sind also gute Näherungen für die Streuung an einem Potential, dessen Äquipotentialflächen einen sinusförmigen Verlauf zeigen. Abweichungen, die bei der Näherung eines „weichen“ Potentials durch eine harte Wand entstehen können, werden in Abschn. 2.3.7 diskutiert.

Auch Masel *et al.* leiteten für die Streuung an einer eindimensionalen sinusförmig gewellten Wand Gl. (2.76) ab, zunächst noch [178] unter Vernachlässigung des Wurzel-Terms im Argument der Bessel-Funktion, später [179] dann auch vollständig⁵. Zuvor hatte schon Wolken [210] die Beugung bei Streuung von He an LiF(001) durch exakte Lösung der Schrödinger-Gleichung für ein „weiches“ He-LiF(001) Potential berechnet. Dabei ähneln die Kurven der als Funktion der Korrugation berechneten Intensitäten für die verschiedenen Beugungsordnungen sehr den Bessel-Funktionen $J_n^2(\Delta z)$ (siehe Fig. 4 in Ref. [210]).

Garibaldi *et al.* haben nur Ablenkwinkel betrachtet, die auch gleichzeitig die Bragg-Bedingung erfüllen. Wird zur Beschreibung der Streuung an nur einer Einheitszelle die Bragg-Bedingung nicht berücksichtigt, indem man auch nicht-ganzzahlige Ordnungen n in Gl. (2.76) zulässt, dann lässt sich auch die Intensität für die Ablenkwinkel θ berechnen, die bei Streuung an mehreren Einheitszellen nach Gl. (2.61) nicht erlaubt sind. Dazu muss Gl. (2.61) nach n umgestellt und als Ordnung der Bessel-Funktion in Gl. (2.76) eingesetzt werden.

$$I(\theta) = J_n^2 \left(\frac{\Delta z \pi}{\lambda_{dB\perp}} (1 + \cos |\theta|) \right) \quad \text{mit} \quad n(\theta) = \frac{d}{\lambda_{dB\perp}} \sin |\theta| \quad (2.79)$$

⁵Man beachte: Diese Arbeiten enthalten viele typographische Fehler wie auch schon andere Autoren bemerkten [181, 183]

Die Bessel-Funktionen sind über die Gamma-Funktion auch für nicht ganzzahlige n definiert.

$$\begin{aligned} J_n(x) &= \sum_{p=0}^{\infty} \frac{(-1)^p (x/2)^{2p+n}}{(p+n)!p!} && \text{für } n \in \mathbb{N} \\ &= \sum_{p=0}^{\infty} \frac{(-1)^p (x/2)^{2p+n}}{\Gamma(p+n+1)\Gamma(p+1)} && \text{für } n \in \mathbb{R} \end{aligned} \quad (2.80)$$

Die nach Gl. (2.79) berechnete Intensität wurde in Abb. 2.14b und 2.14c eingezeichnet (blaue Kurve mit grau gefüllter Fläche). Abgesehen von der Intensität in der Nähe des klassischen Regenbogens θ_{rb} stimmt sie mit der primitiv semiklassischen Kurve (rot gestrichelt) überein. Während letztere wie die klassische Kurve aufgrund der Singularität bei θ_{rb} gegen ∞ strebt und für $|\theta| > \theta_{\text{rb}}$ null ist, zeigt die Kurve, die mit Gl. (2.79) berechnet wurde, einerseits ein endliches Maximum bei $\theta < \theta_{\text{rb}}$ und andererseits eine stetig fallende Intensität auf der klassisch verbotenen „dunklen“ Seite des Regenbogens. Dies ist vollkommen analog zum Unterschied zwischen der Descartesschen Theorie und der Airyschen Theorie des atmosphärischen Regenbogens aus Abschn. 2.3.1 (Abb. 2.7a). Zur Verdeutlichung der Analogie ist der Intensitätsverteilung bei Streuung von Licht am Wassertropfen in Abb. 2.7a die Intensitätsverteilung für Streuung von ^4He -Atomen mit $E_0 = 3 \text{ keV}$ an $\text{LiF}(001)$ mit klassischer Beschreibung nach Gl. (2.53) und semiklassischer Beschreibung mit J_n^2 nach Gl. (2.79) in Abb. 2.7b gegenübergestellt.

In Abb. 2.16 wird die Intensität $I(\theta)$ nach Gl. (2.79) (orange Kurve) und die Intensität der Beugungsmaxima I_n nach Gl. (2.77) (orange Balken) mit der primitiv semiklassischen Rechnung verglichen. Die Ersetzung der Singularität bei θ_{rb} durch ein endliches Maximum bei $m=0$ bewirkt, dass nicht mehr das Beugungsmaximum $n=13$ am klassischen Regenbogen am intensivsten ist, sondern dass für $n=12$. Der Quanten-Regenbogen ist also gegenüber θ_{rb} zu kleineren Winkeln verschoben. Andererseits weisen die Ordnungen $n=14$ und $n=15$ mit $\theta_n > \theta_{\text{rb}}$ endliche Intensität auf. In Quanten-Trajektorien-Rechnungen [206] sind diese Beugungsordnungen das Resultat von komplexen Trajektorien (closed channels) bzw. „abklingenden Wellen“ („evanescent waves“). Da die primitiv semiklassische Theorie und die Lösung mit J_n^2 für $\theta < \theta_{\text{rb}}$ übereinstimmen, letztere aber auch die Intensität am Regenbogen korrekt beschreiben kann, wurde Gl. (2.76) verwendet, wenn die Äquipotentialflächen eines gegebenen Projektil-Oberflächen-Potentials näherungsweise sinusförmig verliefen. Außerdem bricht die primitiv semiklassische Theorie für den Grenzfall kleiner Korrugation zusammen (Abschn. 2.3.4.2), während Gl. (2.76) in diesem Fall exakt wird [139]. Die primitiv semiklassische Theorie ist andererseits allgemeiner, da sie sich nicht nur auf sinusförmige Potentiale beschränkt und auch für weiche und stark korrigierte Potentiale anwendbar ist [139, 179]. Daher kamen in dieser Arbeit beide Näherungen zur Anwendung.

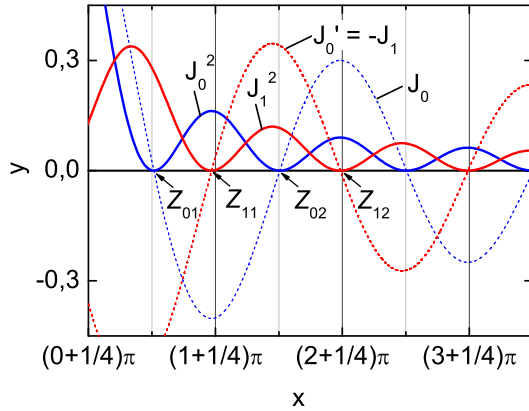


Abb. 2.19: Bessel-Funktion $y = J_0(x)$ (blau gestrichelt), deren Ableitung $J'_0(x) = -J_1(x)$ (rot gestrichelt), sowie deren Quadrate $y = J_0^2(x)$ (blau durchgezogen) und $y = J_1^2(x)$ (rot durchgezogen). Mit Z_{nm} wird die m-te Nullstelle von J_n bezeichnet.

Es soll noch darauf hingewiesen werden, dass bei der Streuung thermischer Atome verschiedene vom Einfallswinkel- und Austrittswinkel abhängende Vorfaktoren für Gl. (2.76) verwendet werden [19, 20, 139, 167, 184, 186, 211]. Diese stammen einerseits aus der Normierung der Intensität des jeweiligen Beugungsstrahls auf den einfallenden Atomstrahl, die beide in der Geometrie für Streuung thermischer Atome große und sehr unterschiedliche Winkel zur Oberfläche aufweisen können [186], und andererseits aus dem Versuch, die Unitaritätsbedingung Gl. (2.71) zu erfüllen, die wegen des θ_n -abhängigen Terms im Argument der Bessel-Funktionen in Gl. (2.76) verletzt wird. Da $\sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n^2(x) = 1$ wird Gl. (2.71) umso schlechter erfüllt, je größer θ_n für die höchste auftretende Beugungsordnung n_{\max} ist. Der entsprechende Korrekturfaktor wird „kinematischer Faktor“ genannt. Je nach Herleitung ergeben sich für ihn ähnliche aber nicht äquivalente Ausdrücke [139, 167, 211].

Der Vorfaktor, der sich auf den Detektorblickwinkel bezieht, kann hier aufgrund der Geometrie der streifenden Streuung vernachlässigt werden. Ebenso der kinematische Vorfaktor, wenn die Korrugation des Potentials gering ist, d.h. wenn $\Delta z < 0,2d$ [20]. Dies war bei den in dieser Arbeit betrachteten Systemen der Fall. Die Vernachlässigung der Vorfaktoren kann zu einer leichten Änderung der relativen Intensität zwischen verschiedenen Beugungsordnungen n führen, hat aber keinen Einfluss auf die Position der Maxima und Minima der Intensitätsmodulation $I_n(k)$ wie in Abb. 2.17. Für $n = 0$ sind die Vorfaktoren exakt 1.

Die Positionen der Maxima von J_n^2 ergeben sich aus den Positionen der Extremwerte von J_n . Diese sind die Nullstellen der Ableitung der Bessel-Funktion $J'_n = \frac{1}{2}(J_{n-1} - J_{n+1})$. Da $J_{-1} = -J_1$ gilt $J'_0 = -J_1$. Die Nullstellen von J_1 sind aber auch die Minima von J_1^2 . Zur Veranschaulichung sind diese Funktionen in Abb. 2.19 dargestellt. Da J_0^2 und J_1^2 in Gl. (2.78) das gleiche Argument haben, hat die Beugungsordnung $n = 1$ bei Streuung an einer sinusförmigen harten Wand immer genau dann ein Minimum, wenn die Intensität der Beugungsordnung $n = 0$ am intensivsten ist (siehe Abb. 2.17b).

Die Nullstellen von J_1 lassen sich durch $Z_{1m} \approx (m + 1/4)\pi$ nähern, wobei $m \in \mathbb{N}$ die fortlaufende Nummerierung der Nullstellen von J_1 bzw. der Maxima von J_0^2 und damit die Ordnung des entsprechenden überzähligen Regenbogens ist (Abb. 2.19). Die Beugungsordnungen $n=0$ und $n=1$ weisen also immer genau dann ein Maximum bzw. Minimum auf, wenn das Argument von J_0^2 in Gl. (2.78) eine Nullstelle von J_1 ist, d.h. wenn

$$\lambda_{dB\perp} = \frac{2\Delta z}{m + 1/4} \quad (2.81)$$

Die Beugungsordnung $n=0$ zeigt hingegen ein Minimum, wenn das Argument von J_0^2 einer Nullstelle von J_0 entspricht. Diese lassen sich durch $Z_{0m} \approx (m - 1/4)\pi$ approximieren (Abb. 2.19). Daher verschwindet die Intensität für $n=0$ wenn

$$\lambda_{dB\perp} = \frac{2\Delta z}{m - 1/4} \quad (2.82)$$

Dies sind dieselben Gleichungen wie in Gl. (2.74) zur Bestimmung der Maxima und Minima von $n=0$ in primitiv semiklassischer Näherung. Cardillo [212] konnte über den gleichen Ansatz mit J_0 die Korrugation der (7×7) -Rekonstruktion der Si(111)-Oberfläche aus den Intensitätsmaxima der Beugungsordnung $n=0$ bei Streuung thermischer He-Atome ermitteln.

Bei höheren Ordnungen n muss $\cos \theta_n < 1$ in Gl. (2.76) berücksichtigt werden. Wird in Gl. (2.77) das Argument von J_n^2 wieder mit einer Nullstelle \hat{Z}_{nm} gleichgesetzt, sodass

$$\hat{Z}_{nm} = \frac{\Delta z \pi}{\lambda_{dB\perp}} \left(1 + \sqrt{1 - \left(\frac{n}{d} \lambda_{dB\perp} \right)^2} \right) \quad (2.83)$$

dann ergibt sich die Senkrecht-Wellenlänge, bei der die Beugungsordnung n ein Extremum aufweist zu

$$\lambda_{dB\perp} = \frac{2d^2 \pi \hat{Z}_{nm} \Delta z}{d^2 \hat{Z}_{nm}^2 + (n\pi \Delta z)^2} \quad (2.84)$$

Dabei ist \hat{Z}_{nm} für das zu m korrespondierende Minimum der Beugungsordnung n die m -te Nullstelle Z_{nm} der Bessel-Funktion ($J_n(Z_{nm})=0$). Für das entsprechende Maximum m der Ordnung n ist \hat{Z}_{nm} die $(m+1)$ -te Nullstelle Z_{nm}^* der Ableitung der Bessel-Funktion ($J'_n(Z_{nm}^*) = \frac{1}{2}J_{n-1}(Z_{nm}^*) - \frac{1}{2}J_{n+1}(Z_{nm}^*)=0$). Da Δz im Allgemeinen eine von $V=E_\perp$ und damit von $\lambda_{dB\perp} = h/\sqrt{2ME_\perp}$ abhängige Funktion ist, ist Gl. (2.83) implizit und muss numerisch gelöst werden. Die Nullstellen Z_{nm} bzw. Z_{nm}^* lassen sich für höhere Ordnungen n und kleine m nicht durch eine einfache Funktion nähern. Die von Masel *et al.* in Ref. [178] angegebene Approximation ist für $n > 1$ unbrauchbar. Eine bessere Näherung ist [205]

$$Z_{nm}^* \approx \left(m + \frac{n}{2} + \frac{1}{4} \right) \pi \quad \text{bzw.} \quad Z_{nm} \approx \left(m + \frac{n}{2} - \frac{1}{4} \right) \pi \quad (2.85)$$

Doch auch diese Näherung zeigt für $n > 3$ deutliche Abweichungen von den hier relevanten ersten fünf Nullstellen $m < 5$. Daher müssen zur genauen Bestimmung der Position der Maxima und Minima der Beugungsordnung n nach Gl. (2.84) die Nullstellen Z_{nm} bzw. Z_{nm}^* numerisch ermittelt werden⁶. Zur Berechnung der überzähligen Regenbögen m bei der Streuung an nur einer Einheitszelle wird die Bragg-Bedingung vernachlässigt, indem man auch nicht-ganzzahlige Ordnungen n in Gl. (2.83) zulässt und die entsprechenden Nullstellen \hat{Z}_{nm} der Bessel-Funktionen nicht-ganzzahliger Ordnung $n \in \mathbb{R}$ numerisch berechnet. Ein Beispiel dafür wird im folgenden Abschnitt gegeben.

2.3.5 Beugungskarten

Aus den Beugungsmustern kann im Prinzip durch eine Inversionsprozedur auf die Korrugation der Oberfläche geschlossen werden [161]. Jedoch können verschiedene Funktionen $\tilde{z}(x)$ in Gl. (2.47) das gleiche Beugungsmuster ergeben [185]. Daher müssen die Intensitäten der Beugungsreflexe über einen weiten Bereich von Wellenzahlen k gemessen werden [161, 185]. Für die Beugung schneller Atome folgt daraus, dass ein gegebenes Potential dann adäquat ist, wenn die daraus resultierenden Maxima und Minima aller Beugungsordnungen n als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB\perp}$ mit den gemessenen Daten übereinstimmen. Da die Bragg-Winkel θ_n als die eine experimentelle Observable nach Gl. (2.62) fast linear von $\lambda_{dB\perp}$ abhängen, bietet sich die Darstellung der Position der Maxima und Minima als Funktion von $\lambda_{dB\perp}$ und θ an, um die charakteristischen Merkmale aus dem Beugungsexperiment in einem einzigen Diagramm darstellen und mit der Theorie vergleichen zu können. In Abb. 2.20 ist solch eine „Beugungskarte“ für die Streuung an einer sinusförmigen harten Wand mit Periodizität $d = 2,84 \text{ \AA}$ und einer Korrugation von $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$ gezeigt. Die theoretischen Positionen der Beugungsordnungen n nach der Bragg-Bedingung Gl. (2.62) sind als grau gestrichelte Kurven dargestellt. Bei welchen $\lambda_{dB\perp}$ eine Beugungsordnung n Intensität aufweist, wird durch die Positionen der überzähligen Regenbögen m bestimmt, die wiederum von der Korrugation des Potentials abhängen.

In primitiv semiklassischer Berechnung ergibt sich die De-Broglie-Wellenlänge des zum überzähligen Regenbogen m korrespondierenden Maximums bzw. Minimums als Funktion des Ablenk winkels θ aus Gl. (2.56) mit der Bedingung Gl. (2.60) zu

$$\lambda_{dB\perp m}^{\max}(\theta) = \frac{\Delta s(\theta)}{m + 1/4} \quad \lambda_{dB\perp m}^{\min}(\theta) = \frac{\Delta s(\theta)}{m - 1/4} \quad (2.86)$$

⁶Im Programm Mathematica steht dafür das Paket „NumericalMath‘BesselZeros“ zur Verfügung.

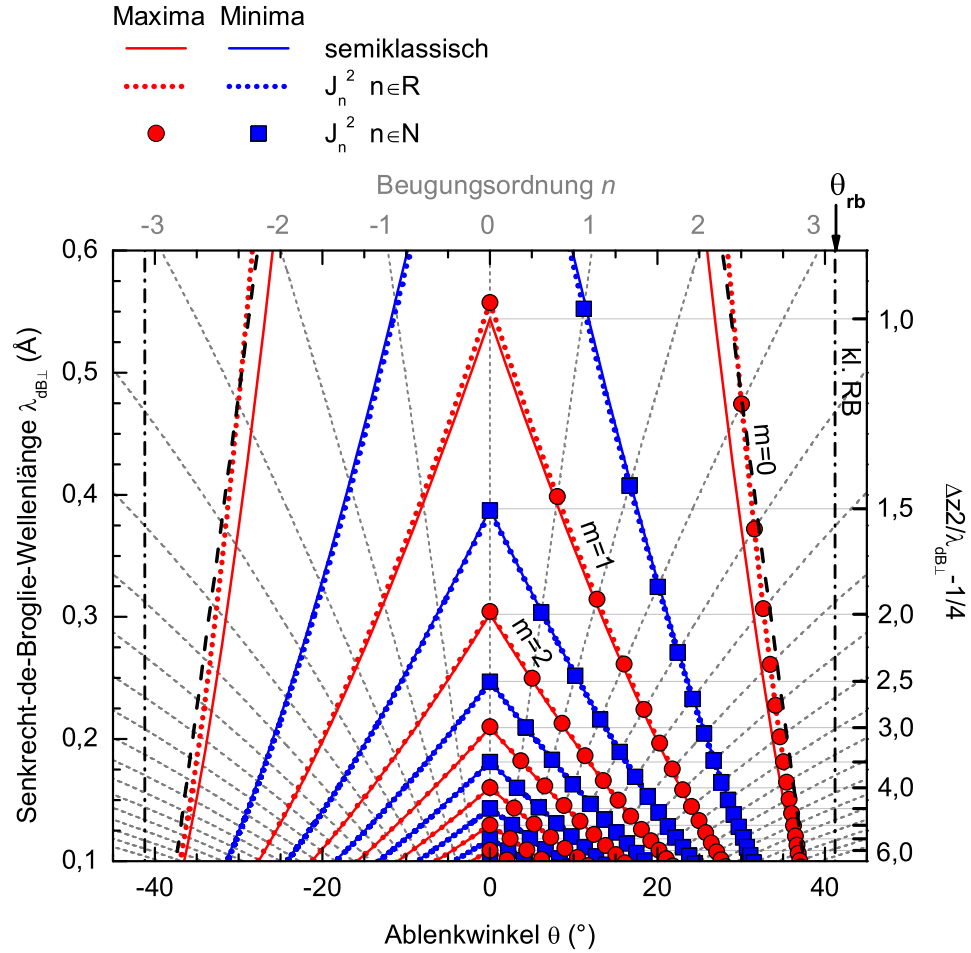


Abb. 2.20: Berechnete Beugungskarte für die Streuung an einer sinusförmigen harten Wand mit Periodizität $d = 2,84 \text{ \AA}$ und einer Korrugation von $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$. Graue gestrichelte Kurven: Position der Bragg-Reflexe nach Gl. (2.62). Durchgezogene/gepunktete Kurven: Position der Maxima (rot) und Minima (blau) der überzähligen Regenbögen $m \leq 6$ aus der primitiv semiklassischen Rechnung nach Gl. (2.86) mit Gl. (2.68) bzw. aus der Lösung mit Bessel-Funktionen J_n nach Gl. (2.84) mit $n \in \mathbb{R}$. Rote Kreise/ blaue Quadrate: Position der Maxima/ Minima der Bragg-Reflexe n nach Gl. (2.84) mit $n \in \mathbb{N}$. Strich-Punkt-Gerade: klassischer Regenbogen nach Gl. (2.51) mit $\theta_{rb} = 41,2^\circ$. Gestrichelte Kurve: Näherung für den Quanten-Regenbogen $m = 0$ nach Gl. (2.88). Die Positionen der Maxima und Minima von $n = 0$ und $n = 1$ können durch Gl. (2.81) bzw. Gl. (2.82) approximiert werden (siehe linke Ordinate).

mit $\Delta s(\theta)$ aus Gl. (2.57). Die durchgezogenen Kurven in Abb. 2.20 repräsentieren die Positionen der Maxima (rot) bzw. Minima (blau) nach Gl. (2.86). Aus der Lösung basierend auf Bessel-Funktionen nach Gl. (2.79) ergeben sich die zu m korrespondierenden Maxima und Minima durch Lösung von Gl. (2.84) für die entsprechenden Nullstellen \hat{Z}_{nm} der Bessel-Funktionen J_n nicht-ganzzahliger Ordnung $n \in \mathbb{R}$. Die berechneten Werte sind in Abb. 2.20 als gepunktete Kurven dargestellt. Die Ergebnisse unterscheiden sich kaum von denen aus der primitiv semiklassischen Rechnung. An den Stellen, an denen die grau gestrichelten Kurven für die Beugungsordnungen n die roten bzw. blauen Kurven eines überzähligen Regenbogens m schneiden, befindet sich ein Intensitätsmaximum bzw. Minimum. Die entsprechenden Positionen ergeben sich als Lösung von Gl. (2.84) für die Nullstellen \hat{Z}_{nm} von J_n mit $n \in \mathbb{N}$ (rote Kreise bzw. blaue Quadrate). Bei kleinem $\lambda_{dB\perp}$ liegen die Maxima verschiedener Ordnungen n der gleichen Ordnung m so dicht zusammen, dass sie experimentell nicht mehr zu trennen sind. Die Maxima und Minima der überzähligen Regenbögen m sind hingegen noch auflösbar.

Die Positionen der Extremwerte der Beugungsordnungen $n = 0$ und $n = 1$ können durch Gl. (2.81) bzw. Gl. (2.82) approximiert werden (siehe linke Ordinate in Abb. 2.20). Daher lässt sich aus der Bestimmung von $\lambda_{dB\perp}$ z.B. für ein Intensitätsmaximum von $n = 0$ die Korrugation Δz der Oberfläche sehr einfach ermitteln. Dazu muss jedoch die Ordnung m des Maximums bekannt sein. Diese gewinnt man durch einfaches Abzählen der überzähligen Regenbögen im Beugungsmuster bei gleichem $\lambda_{dB\perp}$. Dies ist analog zur Glorienstreuung bei binären Stößen von Atomen (Abb. 2.18), bei der die Maxima der Intensität unter $\theta = 0$ als Funktion von λ_{dB} bestimmt werden [128, 163]. Der Glorie-Index ergibt sich dort auch durch Abzählen der Regenbogenmaxima aus der Messung der Intensität als Funktion von θ (siehe Fig. 5 in Ref. [163]). Durch die Beugungskarte wird der Zusammenhang zwischen den Maxima m einer Beugungsordnung n als Funktion von $\lambda_{dB\perp}$ – wie in Abb. 2.17 – und den Maxima m als Funktion von θ – wie in Abb. 2.16 – offensichtlich.

Das höchste Maximum, der Quanten-Regenbogen $m = 0$, ist gegenüber dem klassischen Regenbogen zu kleineren Ablenkswinkeln verschoben (vergl. Abb. 2.16). Der klassische Regenbogen ist aufgrund der konstant gewählten Korrugation nach Gl. (2.51) konstant $\theta_{rb} = 41,2^\circ$. Er ist in Abb. 2.20 mit einer Strich-Punkt-Gerade markiert (kl. RB). Der Quanten-Regenbogen $m = 0$ verschiebt sich hingegen mit wachsendem $\lambda_{dB\perp}$ zu kleineren Ablenkswinkeln. Die jeweils erste Nullstelle der Ableitung der Bessel-Funktion J_n lässt sich gut durch

$$Z_{n0}^* \approx (n + 1) \pi / 3 \quad \text{für} \quad 2 < n < 60 \quad (2.87)$$

nähern. Durch Einsetzen von Gl. (2.87) in Gl. (2.84) ergibt sich die Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge, bei der die Beugungsordnung n am intensivsten ist,

zu

$$\lambda_{\text{dB}\perp}^{m=0}(n) \approx \frac{6(n+1)\Delta z}{(n+1)^2 + (3n\Delta z/d)^2} \quad (2.88)$$

Für das diskutierte Beispiel mit $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$ und $d = 2,84 \text{ \AA}$ ergeben sich damit die in Abb. 2.20 als schwarze gestrichelte Kurve dargestellten Positionen für den Quanten-Regenbogen $m = 0$. Diese Näherung unterscheidet sich kaum von der exakten Lösung (äußere rot gepunktete Kurve).

Setzt man die Bragg-Bedingung $n = d \sin \theta / \lambda_{\text{dB}\perp}$ in Gl. (2.88) ein und löst nach θ auf, dann ergibt sich der Ablenkwinkel des Quanten-Regenbogens $m = 0$ als Funktion von $\lambda_{\text{dB}\perp}$ zu

$$\theta_{m=0} = \arcsin \left(\frac{3\Delta z \left(d + \sqrt{d^2 + \lambda_{\text{dB}\perp} 6\Delta z - \lambda_{\text{dB}\perp}^2} \right) - d\lambda_{\text{dB}\perp}}{d^2 + 9\Delta z^2} \right) \quad (2.89)$$

Für $\lambda_{\text{dB}\perp} = 0,6 \text{ \AA}$ ist der nach Gl. (2.89) berechnete Ablenkwinkel für den Quanten-Regenbogen mehr als 13° kleiner als der klassische Regenbogenwinkel θ_{rb} . Für $\lambda_{\text{dB}\perp} = 0,06 \text{ \AA}$, was ^3He mit $E_0 = 25 \text{ keV}$ bei einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 1^\circ$ entspricht, beträgt die Differenz immer noch fast 3° . Dieser Quanteneffekt könnte also auch dann noch eine Rolle spielen, wenn weder die Beugungsordnungen n noch die überzähligen Regenbögen m experimentell auflösbar sind, also scheinbar ein klassisches Streuregime vorliegt. Die Näherung Gl. (2.89) ist für kleinere $\lambda_{\text{dB}\perp}$ und insbesondere im Grenzfall $\lambda_{\text{dB}\perp} \rightarrow 0$ nicht gültig, da Gl. (2.87) für $n > 60$ die Nullstellen überschätzt.

2.3.6 Trajektorien-Simulation

Mit der bisher betrachteten Näherung des Potentials durch eine sinusförmige harte Wand können die Interferenzmuster in den Intensitätsverteilungen zwar beschrieben werden, um aber Rückschlüsse auf das tatsächliche „weiche“ Potential zwischen Projektil und Oberfläche ziehen zu können, ist eine Trajektorien-Simulation nötig, da dieses Streuproblem nur numerisch lösbar ist. Dabei werden für die Berechnung der Interferenzmuster die gleichen Ansätze wie in der zuvor beschriebenen analytischen Lösung für die harte Wand verwendet. Details und Näherungen der Simulation werden in diesem Abschnitt erläutert.

Danailov *et al.* [97] haben mittels Simulation gezeigt, dass sich die Regenbogenwinkel bei streifender Streuung an einer Oberfläche mit thermisch ausgelenkten Atomen kaum von denen einer Oberfläche ohne thermische Auslenkungen unterscheiden. Auch die hier experimentell bestimmten Regenbogenwinkel zeigten keine Abhängigkeit von der Temperatur der Oberfläche. Weiterhin wurde gezeigt, dass der Rückstoß der Atome der Oberfläche vernachlässigbar gering ist [98], sodass eine zweidimensionale Simulation in Kontinuumsnäherung (Abschn. 2.2.2) fast die gleichen Ergebnisse liefert wie

die 3D-Simulation [98]. Die Gültigkeit dieser Näherungen wurde über den Vergleich der Simulation in Kontinuumsnäherung mit einer 3D-Trajektorien-Simulation von Matulevich [213] mit und ohne thermische Schwingungen für verschiedene Oberflächen und Projektile nochmals überprüft. Wethkam *et al.* [107] haben gezeigt, dass auch korrelierte thermische Schwingungen kaum einen Effekt auf die Position der Regenbogenwinkel haben. Daher wurden in dieser Arbeit die Simulationen in 2D-Kontinuumsnäherung durchgeführt.

Die Beschreibung der Trajektorien erfolgt im Rahmen der klassischen Mechanik, wobei für die semiklassische Auswertung zu jedem Punkt auch der Phasenwinkel φ nach Gl. (2.36) berechnet wird. Die Trajektorien ergeben sich iterativ nach der Euler-Methode aus

$$v_z(t + \tau) = v_z(t) - \tau \frac{\partial V(x, z)}{\partial z} / M \quad (2.90)$$

$$z(t + \tau) = z(t) + \tau v_z(t) \quad (2.91)$$

wobei $V(x, z)$ das axial gemittelte Potential, v_z die Geschwindigkeitskomponente senkrecht zur Oberfläche und M die Masse des Projektils ist. Die Komponente $v_x(t + \tau)$ und $x(t + \tau)$ werden analog berechnet. Der Zeitschritt τ wird so klein gewählt, dass der resultierende Ortsschritt bezüglich der Änderung des Potentials klein genug ist, sodass auch eine weitere Verkleinerung kein anderes Ergebnis liefert, typischerweise ist $\tau = 0,05 \text{ a.u.} / v_z(t = 0)$. Die Phase ergibt sich nach Gl. (2.36) iterativ aus

$$\varphi(t + \tau) = \varphi(t) + k(t)\tau \sqrt{v_z(t)^2 + v_x(t)^2} \quad (2.92)$$

wobei die variierende Wellenzahl für die Bewegung in der (x,z)-Ebene zu jedem Zeitpunkt durch

$$k(t) = \frac{p(t)}{\hbar} = \frac{M}{\hbar} \sqrt{v_z(t)^2 + v_x(t)^2} \quad (2.93)$$

gegeben ist.

Die Trajektorien beginnen bei $z(t = 0) > 10 \text{ a.u.}$ vor der obersten Atomenebene und enden wenn nach der Reflexion $z(t) > 15 \text{ a.u.}$ ist. Die Anfangsgeschwindigkeit ist $v_x(t = 0) = 0$ und $v_z(t = 0) = \sqrt{2E_{\perp}/M}$. Die Startpunkte $x(t = 0)$ werden äquidistant über den symmetrisch irreduziblen Bereich des Potentials $0 < x(t = 0) < d/2$ verteilt. Je nach Komplexität der Äquipotentialflächen des Potentials reichen oft schon 30 Trajektorien, um die Ablenkfunktion hinreichend genau zu beschreiben.

Die Simulation wurden in Delphi geschrieben. Die Ergebnisse mit dem simplen Euler-Algorithmus stimmen gut mit den Ergebnissen anderer Simulationen [64, 107, 213, 214] überein, welche auf besseren Algorithmen wie Runge-Kutta basieren. Da die Simulation einer 2D-Streuverteilung nur

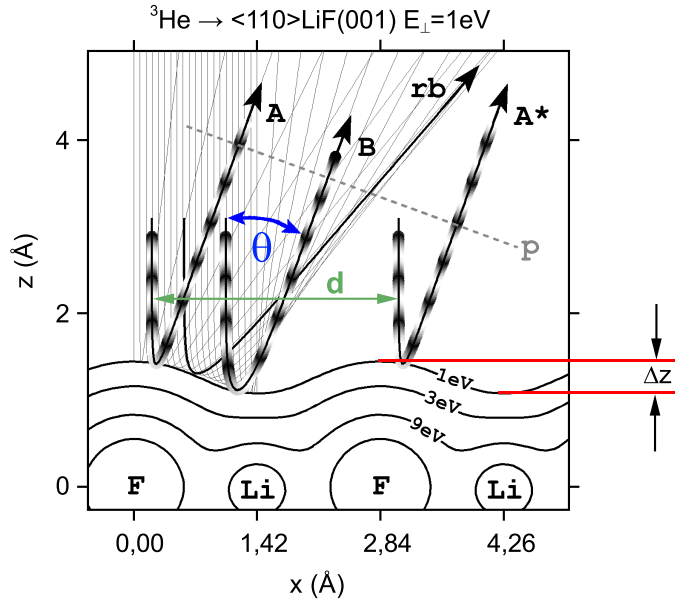


Abb. 2.21: Trajektorien aus der semiklassischen Simulation für $E_{\perp} = 1\text{ eV}$ und Äquipotentialflächen $V(x, z) = 1, 3$ und 9 eV für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Die mit rb bezeichnete Trajektorie entspricht der Streuung unter klassischem Regenbogenwinkel θ_{rb} . Die symmetrisch äquivalenten Trajektorien A und A^* (Periodizität d) haben den gleichen Ablenkwinkel θ wie die Trajektorie B . Die Schattierung entspricht der Phase φ modulo 6π . Die Gerade p markiert die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung liegende Phasenfläche. Δz ist die Korrugation der Äquipotentialflächen.

Sekunden dauert, konnte auf einen optimierteren Algorithmus oder gar eine Übersetzung des Programms in eine Sprache mit schnellerem Compiler verzichtet werden.

In Abb. 2.8a und c sind Trajektorien aus der Simulation der Streuung von Ar -Atomen an $\text{Ag}(111)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung gezeigt. Der größte Ablenkwinkel θ entspricht dem Regenbogenwinkel θ_{rb} . Dieser ist direkt mit dem Ablenkwinkel θ des Intensitätsmaximums der gemessenen Streuverteilung aus Abb. 2.8b bzw. d vergleichbar (Abschn. 2.3.2). In Abb. 2.21 sind Trajektorien für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{LiF}(001)$ mit $E_{\perp} = 1\text{ eV}$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung in der Ebene senkrecht zu den $\langle 110 \rangle$ -Atomketten dargestellt. Zusätzlich sind die Äquipotentialflächen $V(x, z) = \text{konst}$ des verwendeten axial gemittelten $\text{He-LiF}(001)$ -Potentials für $1, 3$ und 9 eV abgebildet. Die mit rb bezeichnete Trajektorie hat den größten Ablenkwinkel, den klassischen Regenbogenwinkel θ_{rb} . Die hervorgehobenen Trajektorien A und B haben den gleichen Ablenkwinkel $\theta < \theta_{rb}$. A^* ist eine zu A symmetrisch äquivalente Trajektorie. Die Schattierung entspricht der Phase φ modulo 6π . Die Gerade p markiert die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der finalen Trajektorie liegende Phasenfläche. A und A^* interferieren konstruktiv,

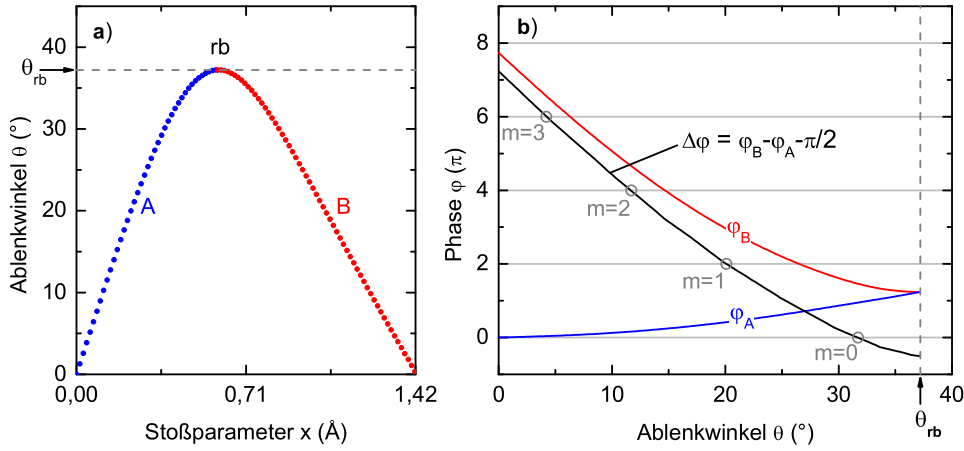


Abb. 2.22: a) Ablenkfunktion und b) Phasendifferenz $\Delta\varphi$ aus der Simulation für Streuung von ^3He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_{\perp} = 1$ eV. Die Werte für Trajektorien vom Typ A sind blau und vom Typ B rot dargestellt.

die Bragg-Bedingung ist für θ also erfüllt. Jedoch interferierten A und B destruktiv, der entsprechende Bragg-Reflex zeigt daher kaum Intensität.

Die Ablenkfunktion aus der Simulation für Abb. 2.21 ist in Abb. 2.22a gezeigt. Die Ablenkwinkel der Trajektorien vom Typ A sind blau und die vom Typ B rot dargestellt. Zur Bestimmung der Phasendifferenz $\Delta\varphi$ zwischen den Trajektorien mit gleichem Ablenkwinkel θ ist die Position der Phasenfläche p nicht relevant, es muss nur die gleiche Phasenfläche sein. Daher wurde p als eine Gerade durch einen festen Punkt mit einem Winkel von $\theta + 90^\circ$ zur Oberflächennormalen definiert. In Abb. 2.22b sind die Phasen φ_A (blaue Kurve) und φ_B (rote Kurve) der beiden interferierenden Trajektorien A bzw. B an der so definierten Phasenfläche $p(\theta)$ als Funktion von θ dargestellt. Die Phasendifferenz ergibt sich unter Berücksichtigung der Phasenkorrektur von $-\pi/2$ beim Durchlaufen des Fokus für φ_B nach Gl. (2.55) zu $\Delta\varphi = \varphi_B - \varphi_A - \pi/2$ (schwarze Kurve). Da in der Simulation nicht zu jeder Trajektorie A die Trajektorie B mit gleichem Ablenkwinkel berechnet wird, werden die Funktionen $\varphi_A(\theta)$ und $\varphi_B(\theta)$ durch Interpolation zwischen den Werten für die berechneten Trajektorien gewonnen.

Die semiklassische Intensität ergibt sich dann nach Gl. (2.39), wobei die klassischen differentiellen Wirkungsquerschnitte σ_A und σ_B aus der Anzahl der Trajektorien vom Typ A bzw. B in einem konstanten Intervall $\Delta\theta$ als Funktion von θ abgeleitet werden. Für stetige Funktionen $\sigma_A(\theta)$ bzw. $\sigma_B(\theta)$ wird zwischen den berechneten Werten der Ablenkfunktion (Abb. 2.22a) interpoliert und das reziproke Verhältnis von $\Delta\theta$ zum korrespondierenden Intervall Δx gebildet. Die Werte für σ_A und σ_B aus dem in Abb. 2.22a gezeigten Fall sind in Abb. 2.23 als blau bzw. rot gepunktete Kurven dargestellt. Da sich $\sigma_A(\theta)$ und $\sigma_B(\theta)$ je nach Form des Potentials unterscheiden, können

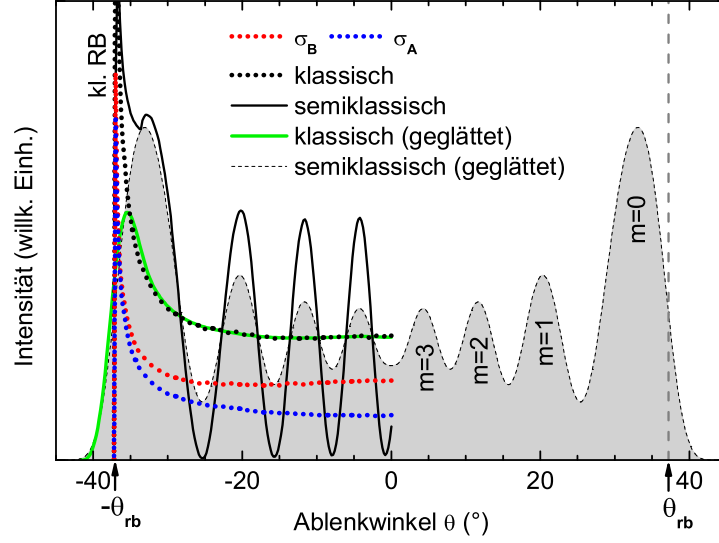


Abb. 2.23: Intensitätsverteilung aus der Simulation für Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_{\perp} = 1$ eV. Blau/ rot gepunktete Kurve: klassischer Wirkungsquerschnitt σ_A bzw. σ_B aus der Anzahl der Trajektorien vom Typ A bzw. B in einem konstanten Intervall um θ . Schwarz gepunktete Kurve: Klassische Intensität $I_{kl} = \sigma_A + \sigma_B$. Grüne Kurve: Klassische Intensität nach Glättung von $\sigma_A(\theta)$ und $\sigma_B(\theta)$. Schwarze Kurve: Semiklassische Intensität ohne Glättung. Gestrichelte Kurve mit grauer Fläche: Semiklassische Intensität basierend auf den geglätteten Funktionen für $\sigma_A(\theta)$ und $\sigma_B(\theta)$ nach Faltung mit einer Gauß-Funktion.

die Trajektorien A und B nicht vollständig destruktiv interferieren. Dieser Effekt ist jedoch vernachlässigbar, die Minima der semiklassischen Intensität unterscheiden sich nach Gl. (2.39) nur um $\sigma_A + \sigma_B - 2\sqrt{\sigma_A\sigma_B}$ von null. Die sich mit $\Delta\varphi(\theta)$, $\sigma_A(\theta)$ und $\sigma_B(\theta)$ ergebende semiklassische Intensität nach Gl. (2.39) ist in Abb. 2.23 als schwarze durchgezogene Kurve dargestellt. Zum Vergleich ist die klassische Intensität $I_{kl} = \sigma_A + \sigma_B$ als schwarz gepunktete Kurve abgebildet. Die Singularität am klassischen Regenbogen (kl. RB) kann durch eine Faltung von $\sigma_A(\theta)$ und $\sigma_B(\theta)$ mit einer Gauß-Funktion passender Breite vermieden werden. Durch diese Glättung werden die Effekte der Winkelaufstreuung durch die thermisch ausgelenkten Atome der Oberfläche berücksichtigt. Die sich damit ergebende geglättete klassische Intensität ist als grüne Kurve dargestellt. Das Maximum ist geringfügig gegenüber θ_{rb} verschoben, wobei nun auch Intensität bei $|\theta| > \theta_{rb}$ zu finden ist. Die auf den geglätteten Funktionen $\sigma_A(\theta)$ und $\sigma_B(\theta)$ basierende semiklassische Intensität ist als gestrichelte Kurve mit grauer Fläche dargestellt, wobei diese Funktion nochmals abschließend mit einer Gauß-Kurve gefaltet wurde, um die Effekte der Winkelaufstreuung zu berücksichtigen. Die Position der Maxima der überzähligen Regenbögen m wird weder durch die erste noch

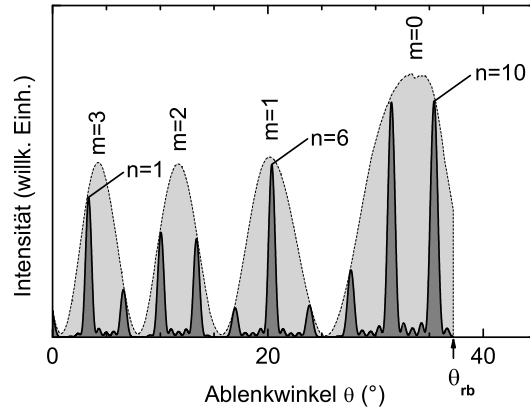


Abb. 2.24: Intensitätsverteilung aus der Simulation der Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_{\perp} = 1 \text{ eV}$ unter Berücksichtigung von nur einer (hellgrau) und von vier (dunkelgrau) Einheitszellen.

durch die zweite Glättung beeinflusst. Die Intensität in der Umgebung von θ_{rb} ist hingegen von der Wahl der Breite der Gauß-Funktionen abhängig. Da die Intensität in der Umgebung des klassischen Regenbogens aufgrund des Versagens der primitiv semiklassischen Näherung bei θ_{rb} nicht korrekt beschrieben wird, können sowieso nur die überzähligen Regenbögen $m \geq 1$ mit den gemessenen Intensitätsverteilungen verglichen werden.

Für eine korrekte semiklassische Beschreibung der Intensität in der Umgebung des klassischen Regenbogens wird eine „uniforme Näherung“ [132, 162, 168] benötigt. Analog zur theoretischen Beschreibung der Intensitätsverteilung bei Stößen zwischen Atomen in der Gasphase, könnte die Ablenkfunktion $\theta(x)$ um $\theta(x) = \theta_{\text{rb}}$ durch eine Parabel genähert werden. Die korrekte Intensität in unmittelbarer Umgebung von θ_{rb} kann dann als Funktion basierend auf dem Quadrat des Airy-Integrals Ai^2 (siehe Abschn. 2.3.1) dargestellt werden [126, 131–133, 209]. Die „Airy-Näherung“ ist jedoch nur bei θ_{rb} korrekt und weicht umso stärker ab, je größer $|\theta - \theta_{\text{rb}}|$ ist. Für eine „uniforme“ Simulation, die sowohl die Intensität bei θ_{rb} , als auch die überzähligen Regenbögen gleichermaßen gut beschreibt, muss zuvor ein Kriterium gefunden werden, ab welchem Winkel θ die primitiv semiklassische Theorie nicht mehr gültig ist und durch die Airy-Näherung ersetzt werden muss. Daley *et al.* [209] haben den gleichen Ansatz zur Vermeidung der Regenbogen-Singularität bei der Beschreibung der Streuung von Ionen mit Energien im Bereich von keV an zwei Atomen verfolgt. Da im Folgenden nur die Positionen der überzähligen Regenbögen von Interesse sind, wurde auf eine Erweiterung des Modells bislang verzichtet.

In der Simulation können auch die symmetrisch äquivalenten Trajektorien vom Typ A^* (Abb. 2.21) aus den benachbarten Einheitszellen berücksichtigt werden. Diese sind jeweils um ein Vielfaches von d bezüglich der simu-

lierten Trajektorien verschoben, mit diesen aber ansonsten identisch. Daher müssen keine weiteren Trajektorien berechnet werden. Es muss nur die zusätzliche Phasenverschiebung aufgrund des Wegunterschied s_0 (Abb. 2.12) berücksichtigt werden. Die Intensität ergibt sich dann aus dem Quadrat der Streuamplitude A_{st} nach Gl. (2.35) für alle Trajektorien j der betrachteten Einheitszellen unter Berücksichtigung der Phasenkorrektur $-\pi/2$ für die Trajektorien vom Typ B . Werden auf diese Weise mehrere Einheitszellen berücksichtigt, dann treten unter den Bragg-Winkeln θ_n die Beugungsmaxima n in Erscheinung. In Abb. 2.24 sind die Intensitätsverteilungen aus der Simulation für das oben gewählte Beispiel bei Berücksichtigung nur einer (hellgrau) und vier (dunkelgrau) Einheitszellen gegenübergestellt⁷.

Die Breite der Beugungsmaxima n sinkt mit der Anzahl der berücksichtigten Einheitszellen. Bei der niederenergetischen Elektronenbeugung (LEED) wird die Kohärenzlänge – d.h. die erforderliche Breite der Oberfläche, die bei idealer Elektronenkanone die gleiche Verbreiterung der Reflexe erzeugt wie die gegebene Elektronenkanone bei einem idealen, unendlich großen Kristall – aus der Halbwertsbreite der Beugungsmaxima abgeschätzt. In diesem Sinne ist die Anzahl der Einheitszellen der Weite d , die in der Simulation berücksichtigt werden muss, damit die Breite der Beugungsmaxima mit den experimentellen Beobachtungen übereinstimmt, eine Kohärenzlänge. Bei der Beugung schneller Atome wird die minimale Halbwertsbreite der Beugungsmaxima jedoch von der Divergenz des einlaufenden Atomstrahls bestimmt, wie später in Abschn. 5.1.3 gezeigt wird. Bei kleinen $\lambda_{dB\perp}$ ist die Halbwertsbreite der gemessenen Beugungsmaxima größer als die Breite der Beugungsmaxima aus der Simulation mit minimaler Kohärenzlänge d (2 Einheitszellen). Für die Interferenzmuster der überzähligen Regenbögen ist ohnehin nur eine Einheitszelle erforderlich. Die Ableitung einer Kohärenzlänge wie bei LEED aus den experimentellen Beugungsmustern ist also nicht möglich bzw. nicht sinnvoll.

Die Intensität der Ordnung $n = 10$ in Abb. 2.24 ist von der willkürlichen Glättung des klassischen Wirkungsquerschnitts abhängig (vergl. Abb. 2.23). Ohne eine Glättung zur Vermeidung der Singularität bei θ_{rb} sind die Intensitätsverteilungen für verschiedene $\lambda_{dB\perp}$ jedoch nicht einheitlich normierbar. Insbesondere wenn in den simulierten Intensitätsverteilungen nur wenige Beugungsmaxima auftreten, das Beugungsmaximum am Regenbogen also stärker beiträgt, ist die Normierung von den Parametern der Glättung abhängig.

Die relative Intensität der Maxima $n = 1$ und $n = 6$ Abb. 2.24 ist hoch, da die entsprechenden Bragg-Winkel mit dem Maximum des überzähligen Regenbogens $m = 3$ bzw. $m = 1$ zusammenfallen. Wird die De-Broglie-

⁷Da die Intensitätsverteilungen auf die Fläche unter der Kurve normiert sind, wurden die Intensitäten für diese Gegenüberstellung skaliert. Auf die abschließende Faltung mit einer Gauß-Funktion wie in Abb. 2.23 wurde hier verzichtet.

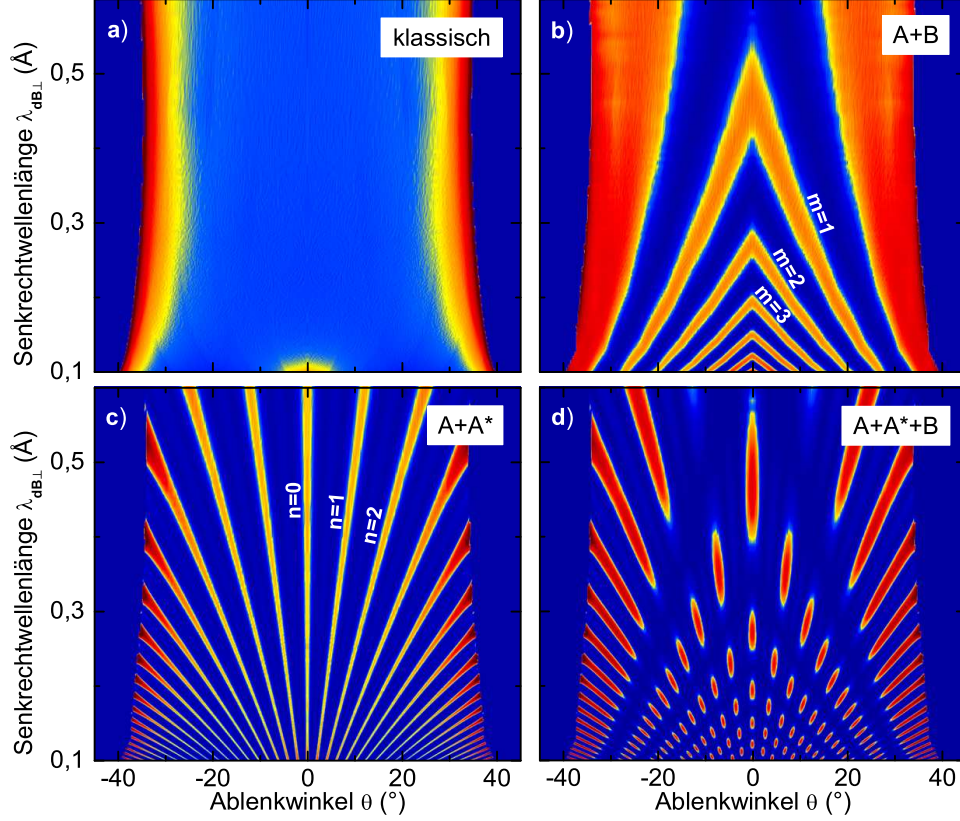
Simulation $^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$ 

Abb. 2.25: Beugungskarten aus der Trajektoriensimulation für Streuung von ^3He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. **a)** Klassische Simulation, **b)** semiklassische Simulation unter Berücksichtigung der Interferenz zwischen den Trajektorien vom Typ A und B , **c)** A und A^* sowie **d)** A , A^* und B . Rot = hohe, blau = niedrige Intensität. n ist die Ordnung des Bragg-Reflexes, m die Ordnung des überzähligen Regenbogens. Die Simulation basiert auf HF-Potentialen von Gärtner (Abschn. 5.1.5.2) ohne Berücksichtigung des Rumplings (Abschn. 5.1.7). Für c) und d) wurde eine Kohärenzlänge von $2d$ angenommen.

Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ verringert, dann werden die Bragg-Winkel θ_n kleiner, während sich die Maxima der überzähligen Regenbögen m zu größeren Ablenkungswinkeln verschieben. Aus diesem Grund oszilliert die Intensität jeder Beugungsordnung n mit $\lambda_{\text{dB}\perp}$. Dies wird besonders anschaulich in den in Abb. 2.25 gezeigten Beugungskarten (Abschn. 2.3.5) aus der Simulation der Streuung von ^3He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung in einem Intervall von $0,1\text{\AA} < \lambda_{\text{dB}\perp} < 0,6\text{\AA}$. Rot repräsentiert hohe und blau niedrige Intensität. In Abb. 2.25a ist das Ergebnis der klassischen Simulation dargestellt. Hier zeigen sich nur die beiden klassischen Regenbogenmaxima bei großen Ablenkungswinkeln $|\theta|$. Wird die Interferenz der Trajektorien vom

Typ A und B berücksichtigt, dann ergibt sich die in Abb. 2.25b gezeigte Beugungskarte. Je kleiner $\lambda_{dB\perp}$ wird, desto größer wird der Ablenkwinkel der überzähligen Regenbögen m . Wird hingegen nur die Interferenz zwischen den symmetrisch äquivalenten Trajektorien vom Typ A und A^* berücksichtigt, dann zeigen sich nur die Bragg-Maxima n , deren Ablenkwinkel θ_n mit sinkendem $\lambda_{dB\perp}$ kleiner werden. Wird die Interferenz zwischen A , B und A^* berücksichtigt, dann ergibt sich die in Abb. 2.25d gezeigte Beugungskarte. Für b) und d) wurde eine Kohärenzlänge von $2d$ angenommen, d.h. nur die Interferenz der Trajektorien aus drei Einheitszellen betrachtet. Die Beugungskarte in d) zeigt alle charakteristischen Merkmale der später in Abschn. 5.1.6 beschriebenen Beugungskarte aus experimentellen Intensitätsverteilungen. Die Intensität entlang der Beugungsordnungen n oszilliert in Abhängigkeit von $\lambda_{dB\perp}$, für kleine $\lambda_{dB\perp}$ liegen die Maxima gleicher Ordnung m verschiedener Ordnungen n so dicht zusammen, dass letztere experimentell nicht mehr aufgelöst werden können.

2.3.7 Korrektur der Abweichungen durch ein Potential in Harte-Wand-Näherung

Die Harte-Wand-Näherung Gl. (2.48) hat den Vorteil, dass für sie eine einfache analytische Lösung existiert, welche auch die Intensität in der Umgebung des klassischen Regenbogens θ_{rb} korrekt beschreibt. Andererseits wird die Variation der Geschwindigkeit des Projektils im realen Potential vernachlässigt, was zu Abweichungen bei der Position der überzähligen Regenbögen führen kann. Mit der semiklassischen Trajektorien-Simulation werden zwar die überzähligen Regenbögen richtig beschrieben, da die Bewegung des Projektils voll berücksichtigt wird, dafür versagt die primitiv semiklassische Näherung aber in der Umgebung von θ_{rb} . In diesem Abschnitt wird gezeigt, welche Abweichungen durch die Harte-Wand-Näherung entstehen können und wie diese mit Hilfe der Simulation korrigiert werden können. Auf diese Weise können die Vorteile beider Beschreibungen kombiniert werden.

Nehmen wir ein Projektil mit der anfänglichen kinetischen Energie $E_{\perp i}$ an, welches senkrecht auf ein sinusförmiges Potential $V(x, z)$ trifft, das linear mit dem Abstand zur Oberfläche fällt⁸, wobei die Korrugation der Äquipotentialflächen linear von der potentiellen Energie abhängt und die zu $E_{\perp i}$ korrespondierende Äquipotentialfläche $V(x, z) = E_{\perp i}$ eine Korrugation von Δz aufweist. Die Äquipotentialflächen eines solchen Potentials werden

⁸Realistisch wäre ein exponentiell sinkendes Potential, aber zur Abschätzung der Richtung der Abweichungen vom Ergebnis in Harte-Wand-Näherung kann man sich auf diesen einfachen Fall beschränken.

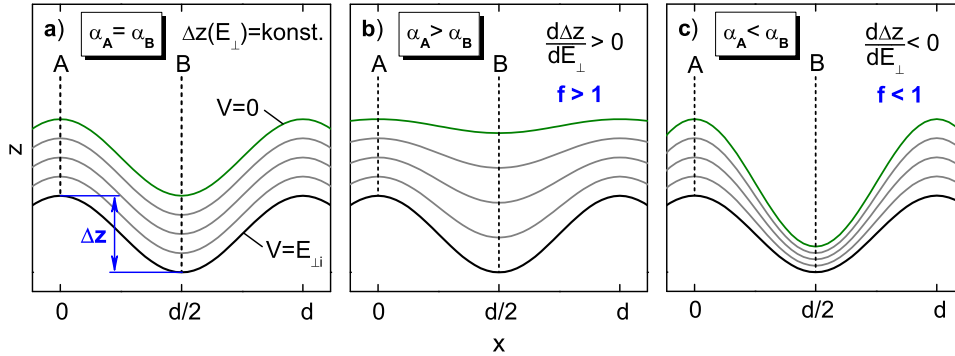


Abb. 2.26: Äquipotentiallinien $V(x, z) = \text{konst} = qE_{\perp i}/4$ mit $q = 0, \dots, 4$ für verschiedene weiche Potentiale nach Gl. (2.94) mit derselben Korrugation $\Delta z(E_{\perp i})$ für a) $\alpha_A = \alpha_B$ ($\Delta z(E_{\perp}) = \text{konst}$), b) $\alpha_A > \alpha_B$ ($\Delta z(E_{\perp})$ steigt mit E_{\perp}) und c) $\alpha_A < \alpha_B$ ($\Delta z(E_{\perp})$ sinkt mit E_{\perp}). Markiert sind die beiden Trajektorien vom Typ A und B mit $\theta = 0$, die zur Intensität der Beugungsordnung $n = 0$ beitragen.

durch

$$z(V, x) = \frac{\Delta z}{2} (\cos(x2\pi/d) + 1) + \frac{E_{\perp i} - V}{2} \left((\alpha_A^{-1} - \alpha_B^{-1}) \cos(x2\pi/d) + \alpha_A^{-1} + \alpha_B^{-1} \right) \quad (2.94)$$

beschrieben, wobei α_A und α_B die Reichweite und die Korrugation der Äquipotentialflächen $V(x, z) = \text{konst} < E_{\perp i}$ bestimmen. In Abb. 2.26a bis c sind die drei möglichen Fälle $\alpha_A = \alpha_B$, $\alpha_A > \alpha_B$ und $\alpha_A < \alpha_B$ skizziert. Diese drei Potentiale sind in Harte-Wand-Näherung Gl. (2.48) identisch.

Die Interferenz zwischen den beiden gestrichelt dargestellten Trajektorien A und B bestimmt die Intensität der Beugungsordnung $n = 0$. Aufgrund der Energieerhaltung fallen deren Umkehrpunkte mit $V(x, z) = E_{\perp i}$ zusammen. Der Wegunterschied zwischen A und B ist dann $\Delta s = 2\Delta z$, wie bei der harten Wand. In Harte-Wand-Näherung ist $\lambda_{dB\perp} = \text{konst} = h/\sqrt{2ME_{\perp i}}$. Die Phasendifferenz ergibt sich dann nach Gl. (2.55) zu

$$\Delta\varphi_{\text{HWN}} = 4\pi\Delta z(E_{\perp})/\lambda_{dB\perp} - \pi/2 \quad (2.95)$$

Im Vergleich dazu muss bei einem weichen Potential die im Allgemeinen unterschiedliche Variation der Geschwindigkeit $v(z)$ entlang der Wege A und B berücksichtigt werden. Die Phasendifferenz ist dann

$$\Delta\varphi = \varphi_B - \varphi_A = \frac{M}{\hbar} \left(\int_B v_B(z) dz - \int_A v_A(z) dz \right) - \frac{\pi}{2} \quad (2.96)$$

Für den Weg A mit $x = 0$ und B mit $x = d/2$ ergibt sich das Potential aus Gl. (2.94) zu

$$\begin{aligned} V(z) &= -\alpha\hat{z} + E_{\perp} & \text{für } \hat{z} < E_{\perp}/\alpha \\ &= 0 & \text{für } \hat{z} > E_{\perp}/\alpha \end{aligned} \quad (2.97)$$

wobei für Weg A $\hat{z} = z - \Delta z$ und $\alpha = \alpha_A$ bzw. für Weg B $\hat{z} = z$ und $\alpha = \alpha_B$. Über die Energieerhaltung ergibt sich die Geschwindigkeit des Projektils zu

$$v(z) = \sqrt{2(E_{\perp} - V(z)) / M} \quad (2.98)$$

Das Phasenintegral für den Weg von $V(z) = 0$ bis $V(z) = E_{\perp}$ und wieder zurück beträgt

$$\varphi = 2 \frac{M}{\hbar} \int_0^{E_{\perp}/\alpha} v(z) dz = \frac{1}{\hbar} \sqrt{2E_{\perp}^3 M} \frac{4}{3} \alpha^{-1} \quad (2.99)$$

Unterscheidet sich der Anstieg α_A des Potentials auf dem Weg A vom Anstieg α_B auf dem Weg B , dann kommt es neben der Phasenverschiebung aufgrund der Korrugation Δz zu einer zusätzlichen Phasenverschiebung. Die Phase nach dem Durchlaufen des Potentials auf dem Weg A ist

$$\varphi_A = \frac{1}{\hbar} \sqrt{2E_{\perp}^3 M} \frac{4}{3} \alpha_A^{-1} \quad (2.100)$$

Der zusätzliche Weg entlang B gegenüber A , im Bereich, in dem $V(z) = 0$ ist, beträgt (hin und zurück)

$$s = 2E_{\perp} \left(\alpha_A^{-1} - \alpha_B^{-1} \right) + 2\Delta z \quad (2.101)$$

Mit Gl. (2.37) und Gl. (2.99) ergibt sich die Phase nach Durchlaufen von s und des Potentials auf dem Weg B unter Berücksichtigung des Phasensprungs von $-\pi/2$ beim Fokus zu

$$\varphi_B = \frac{2}{\hbar} \sqrt{2E_{\perp}^3 M} \left(\alpha_A^{-1} - \frac{1}{3} \alpha_B^{-1} \right) + \frac{2}{\hbar} \Delta z \sqrt{2E_{\perp} M} - \frac{\pi}{2} \quad (2.102)$$

Die Phasendifferenz zwischen Weg A und B ist dann

$$\Delta\varphi = \varphi_B - \varphi_A = \frac{2}{3\hbar} \sqrt{2E_{\perp}^3 M} \left(E_{\perp} \left(\alpha_A^{-1} - \alpha_B^{-1} \right) + \Delta z \right) - \frac{\pi}{2} \quad (2.103)$$

Vergleicht man dieses Ergebnis mit der Phasendifferenz $\Delta\varphi_{\text{HWN}}$ für die harte Wand mit der gleichen Korrugation Δz aus Gl. (2.95) dann ergibt sich

$$\Delta\varphi = \Delta\varphi_{\text{HWN}} + \frac{2}{3\hbar} \sqrt{2E_{\perp}^3 M} \left(\alpha_A^{-1} - \alpha_B^{-1} \right) \quad (2.104)$$

Je mehr sich also α_A von α_B unterscheidet, desto größer wird der Betrag der zusätzlichen Phasenverschiebung gegenüber der Harte-Wand-Näherung. Um die Korrugation eines realistischen Potentials mit der Korrugation vergleichen zu können, die in Harte-Wand-Näherung aus experimentellen Beugungsmustern gewonnenen wurde, muss die Abweichung durch diese zusätzlichen Phasenverschiebung berücksichtigt werden.

Im Fall $\alpha_A \approx \alpha_B$ (Abb. 2.26a), wenn die Äquipotentialflächen parallel zueinander verlaufen, die Korrugation $\Delta z(E_\perp)$ also näherungsweise konstant bleibt, ist die Approximation durch eine harte Wand eine gute Näherung. Wenn $\alpha_A > \alpha_B$ (Abb. 2.26b), die Korrugation $\Delta z(E_\perp)$ also steigt je, näher das Projektil mit zunehmendem E_\perp der Oberfläche kommt, dann ist nach Gl. (2.104) die tatsächliche Phasendifferenz kleiner als in Harte-Wand-Näherung $\Delta\varphi < \Delta\varphi_{\text{HWN}}$. Eine z.B. mittels Gl. (2.95) und Gl. (2.40) aus der Intensitätsmodulation des Beugungsreflexes $n=0$ ermittelte Korrugation Δz_{HWN} ist deshalb gegenüber der Korrugation des tatsächlichen „weichen“ Potentials zu klein. In erster Näherung kann die Abweichung durch einen Faktor $f > 1$ korrigiert werden, sodass $\Delta z = f \Delta z_{\text{HWN}}$. Im umgekehrten Fall $\alpha_A < \alpha_B$ (Abb. 2.26c), wenn der Abstand der Äquipotentialflächen auf dem Weg B geringer ist als auf dem Weg A , $\Delta z(E_\perp)$ also mit E_\perp sinkt, dann ist $\Delta\varphi > \Delta\varphi_{\text{HWN}}$ und $f < 1$.

Im Allgemeinen sinkt die Korrugation des Projektil-Oberfläche-Potentials mit zunehmendem Abstand zur Oberfläche, so wie in Abb. 2.8c. Experimentelle Daten, die in Harte-Wand-Näherung analysiert wurden, unterschätzen daher die tatsächliche Korrugation [70, 75, 178]. Wenn eine Oberfläche aus zwei verschiedenen Atomen mit unterschiedlich starken Potentials besteht, wie z.B. He-Li⁺ und He-F⁻ bei He-LiF(001), dann kann deren Superposition im relevanten Energiebereich eine konstante Korrugation ergeben, so wie in Abb. 2.26a. Es ist aber auch ein Potential wie in Abb. 2.26c möglich, wenn sich auf dem Weg B ein Minimum mit $V < 0$ befindet oder wie z.B. bei dem entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung gemittelten He-c(1×3)O/Ni(110)-Potential, das bei großen Abständen von den O-Adsorbat-Atomen dominiert wird, während bei kleinen Abständen die Ni-Atome zwischen den O-Atomen stärker beitragen und die Korrugation verringern.

Das oben angenommene linear fallende Potential ist unrealistisch und die harte Wand eine umso schlechtere Näherung, je kleiner der Anstieg α in Gl. (2.97) ist. Im Grenzfall sehr großer Steigungen α_A und α_B geht der zweite Term in Gl. (2.104) gegen null und man erhält das gleiche Ergebnis wie für die harte Wand. Ein realistischeres exponentiell fallendes Potential ähnelt mehr einer harten Wand. Armand und Manson [215] haben für ein exponentiell fallendes sinusförmiges Potential die Intensitäten der Beugungsreflexe durch Lösung der Schrödinger-Gleichung ermittelt und gezeigt, dass die in Harte-Wand-Näherung berechneten Intensitäten davon abweichen können. Der Effekt wird geringer, je größer der Betrag des Arguments in der Exponentialfunktion ist, d.h. je ähnlicher das Potential der harten Wand ist.

Da für realistische Potentiale die Abweichung durch die Harte-Wand-Näherung im Allgemeinen nicht analytisch zu berechnen ist, wurden die Korrekturfaktoren f mit der Simulation (Abschn. 2.3.6) bestimmt. Dazu wurde die Phasenverschiebungen $\Delta\varphi$ zwischen den Trajektorien A und B , welche die Intensität der Beugungsordnung $n=0$ bestimmen, sowohl unter Berücksichtigung der Variation von $k(t)$ nach Gl. (2.93) als auch bei

$k = \text{konst} = \sqrt{2ME_{\perp i}}/\hbar$ berechnet. Der erste Fall entspricht der numerischen Lösung der Integrale in Gl. (2.96), der zweite Fall der Lösung in Harte-Wand-Näherung Gl. (2.95). Durch Anpassung der Korrugation Δz in Gl. (2.95) mit f lässt sich zu jeder Senkrechtenenergie E_{\perp} genau die Korrugation der harten Wand bestimmen, welche die gleiche Phasenverschiebung wie das tatsächliche Potential liefert, sodass $\Delta\varphi_{\text{HWN}} = \Delta\varphi$. Anwendungsbeispiele finden sich in Abschn. 5.1.5.2 (Abb. 5.31), in Abschn. 5.2.4 (Abb. 5.81) und in Abschn. 7.1.4 (Abb. 7.19). Eine derart einfache Korrektur ist bei der Analyse der Daten aus der Streuung thermischer Atome nicht möglich, daher bleiben die resultierenden Abweichungen dort meist unberücksichtigt.

Mit der hier beschriebenen Korrektur werden nur die Abweichungen aufgrund der Vernachlässigung der Variation der Geschwindigkeit behoben. Der Unterschied der Weglänge einer realistischen (gebogenen) Trajektorie mit $\theta > 0$ gegenüber der Reflexion an der harten Wand (vergl. Abb. 2.21 und Abb. 2.12) wird vernachlässigt. Da aber beide Trajektorien A und B in ähnlicher Weise betroffen sind, resultiert daraus keine signifikante Änderung von $\Delta\varphi$. Die Ermittlung von f ist nur mit einem gegebenem Potential möglich. Ohne theoretische Vorgaben oder Annahmen über das Potential kann lediglich aus dem Vorzeichen des Anstiegs der experimentell bestimmten Funktion $\Delta z_{\text{HWN}}(E_{\perp})$ auf die Richtung der nötigen Korrektur geschlossen werden (siehe Abb. 2.26).

Weitere Ansätze für die Berücksichtigung eines „weichen“ Potentials bei der Analyse der Intensität der Beugungsreflexe finden sich bei Hubbard *et al.* [172] und bei Meyer und Toennies [216]. In Ref. [172] wird eine semiklassische Theorie für ein weiches Projektil-Oberfläche-Potential abgeleitet, deren Lösung auch auf Bessel-Funktionen J_n basieren, jedoch ein komplizierteres Argument aufweisen als in Gl. (2.76). Die damit berechneten Intensitätsmodulationen der Ordnungen $0 \leq n \leq 3$ bei Streuung von He mit 20 meV an LiF(110) zeigen eine gute Übereinstimmung mit den exakten Rechnungen von Wolken [210] für dasselbe Potential. Ersetzt man das weiche Potential durch eine harte Wand, dann geht Hubbards Lösung in Gl. (2.76) über. Die in Ref. [216] zur Berechnung der Intensität der Beugungsmaxima für weiche Potentiale vorgestellte Methode basiert auf Bessel-Funktionen J_n mit einem Argument, dessen Parameter sich auch aus der klassischen Trajektoriensimulation gewinnen lassen sollen [216].

Kapitel 3

Experimentelle Grundlagen

Die experimentelle Umsetzung der streifenden Streuung von Ionen und Atomen an Festkörper-Oberflächen stellt hohe Ansprüche an den experimentellen Aufbau. Es erfordert einen Teilchenstrahl mit gegenüber dem Einfallswinkel vernachlässigbarer Divergenz, eine spezielle Geometrie der Streukammer, atomar ebene und reine Oberflächen, Ultrahochvakuum-Bedingungen (UHV) und einen Teilchen-Detektor mit hohem räumlichem Auflösungsvermögen zur Messung der Streuwinkel. Auf diese Aspekte wird in den folgenden Abschnitten eingegangen.

3.1 Aufbau des Experiments

Alle hier vorgestellten Experimente wurden an der sogenannten „EZR1-Anlage“ durchgeführt, die in Abb. 3.1 mit zwei Fotos gezeigt wird. Da die Funktionsweise des Beschleunigers und der Aufbau der Streukammer in vorangegangenen Arbeiten [217, 218] schon ausführlich beschrieben wurde, werden im Folgenden die wesentlichen Funktionen nur kurz zusammengefasst und die während des Experiments gesammelten zusätzlichen Erkenntnisse – insbesondere bezüglich des neuen Detektors – detailliert beschrieben.

3.1.1 Der Beschleuniger

Zur Erzeugung eines Ionenstrahls stand dem Experiment eine Elektron-Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle¹ (EZR) zur Verfügung [219]. Die EZR-Quelle ((2) in Abb. 3.1a) erzeugt positiv geladene Ionen durch Elektronenstöße mit dem jeweiligen Gas im Quellenbereich. Der Quellenbereich ist von einem Permanentmagnet-System umgeben. Dadurch beschreiben die Elektronen Schrauben-Bahnen um die Magnetfeldlinien. Diese Zyklotronbewegung stellt sich so ein, dass Zentrifugalkraft und Lorentz-Kraft im Gleichgewicht

¹EZR-Quelle „Nanogan“ der Firma Pantechnik, www.pantechnik.fr

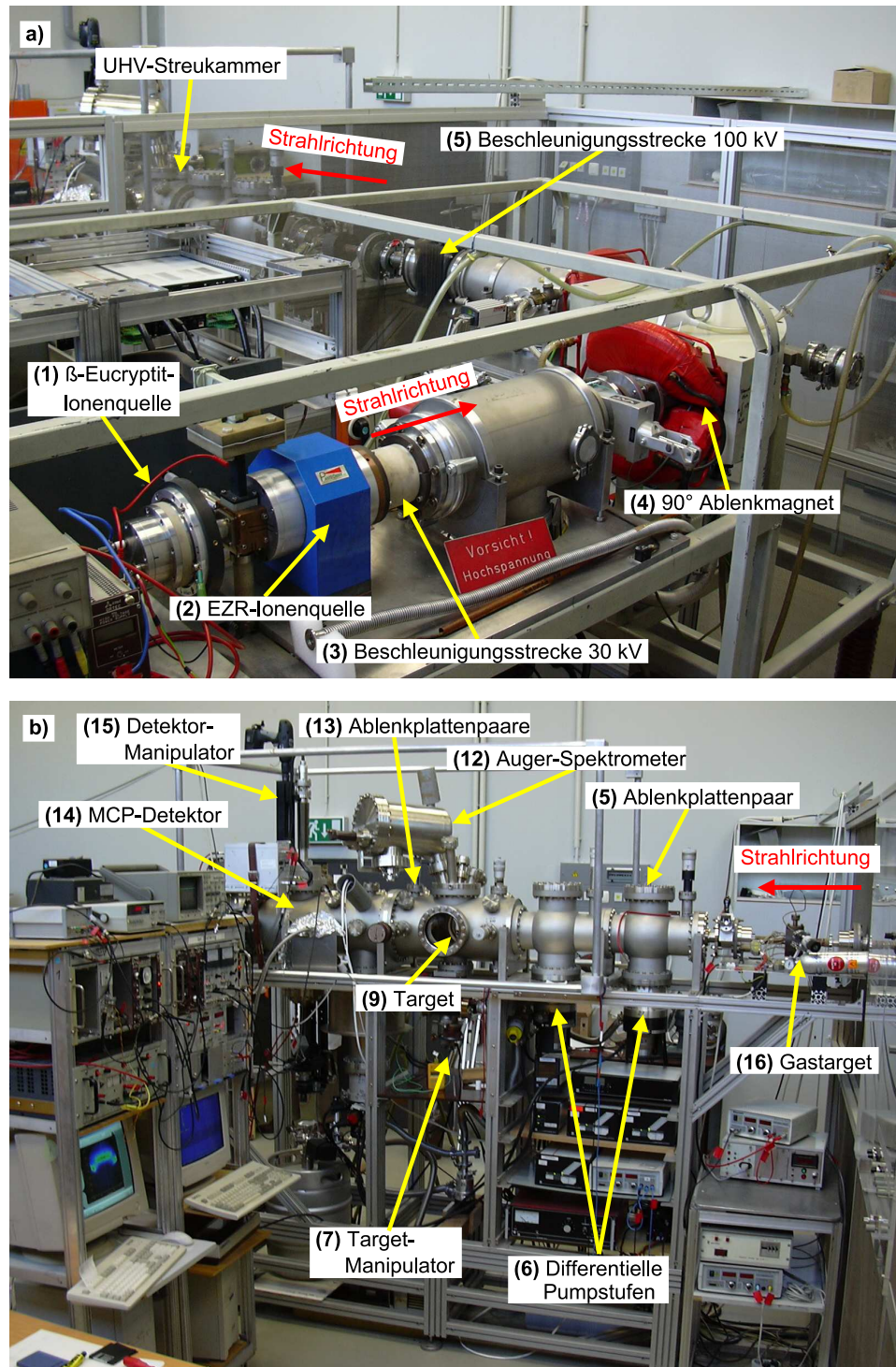


Abb. 3.1: Experimenteller Aufbau der EZR1-Anlage. **a)** Beschleuniger, **b)** UHV-Streukammer (Nummerierung wie in Abb. 3.2); aus Ref. [217] mit Anpassungen.

sind. Die Zyklotronfrequenz ist mit $\omega_c = \frac{e}{M}B$ von der Stärke des Magnetfeldes B und der Masse M abhängig. Die Mikrowellenfrequenz ist mit 10 GHz so gewählt, dass sie in Resonanz zur Zyklotronfrequenz der Elektronen im Magnetfeld ist. Auf diese Weise können die Elektronen bis zu einigen 10 keV beschleunigt werden. Die Elektronen stoßen mit den jeweiligen Gas-Teilchen im Quellenbereich und ionisieren diese. Die herausgeschlagenen Elektronen werden wieder auf Zyklotronbahnen beschleunigt und können weitere Gas-Teilchen ionisieren und so ein Plasma erhalten. Durch die hohen Magnetfeldstärken ergeben sich innerhalb des Quellenbereichs sehr lange Elektronenbahnen. Ein Elektron kann dadurch sehr oft mit dem Gas wechselwirken, was die Erzeugung hoch geladener Ionen ermöglicht.

Die so erzeugten Ionen werden dann durch ein elektrisches Feld entlang der Achse der Quelle mit einer Spannung von bis zu 30 kV ((3) in Abb. 3.1a) aus dem Quellenbereich abgesaugt. Der Druck des zu ionisierenden Gases wird durch ein Nadel-Ventil reguliert. Es können auch feste Substanzen in den Quellenbereich eingebracht werden, die dort im Plasma eines Trärgases zerstäubt werden (Sputtern). Die frei werdenden Partikel werden anschließend ionisiert. Diese Methode ist aber nur bei bestimmten Verbindungen ausreichend effektiv. In den übrigen Fällen kann man mittels eines Ofens feste Substanzen im Quellenbereich verdampfen und vom Plasma des Trärgases ionisieren lassen. Der Quellendruck kann mit der Ofentemperatur über den Dampfdruck der jeweiligen Verbindung gesteuert werden. Die entscheidenden Parameter für den Betrieb einer EZR-Quelle sind Gasdruck und Mikrowellen-Leistung. In dieser Arbeit wurden fast ausschließlich einfach geladene Ionen genutzt. Um diese bevorzugt zu erzeugen, erwiesen sich Mikrowellen-Leistungen im Bereich von einigen Watt und ein Quellendruck im Bereich von einigen 10^{-5} mbar als günstig.

Zur Erzeugung von Alkali-Ionen wurde ein zweiter Typ von Ionenquelle benutzt: Eine β -Eucryptit-Ionenquelle². Es handelt sich dabei um einen Kristall, der beim Erhitzen über 800 °C für einige 100 Stunden jeweils eine bestimmte Sorte Alkali-Ionen emittiert. Die β -Eucryptit-Ionenquelle wurde in den Strahlengang der EZR-Quelle eingebaut ((1) in Abb. 3.1a) und mit einer Absaugspannung von 400 bis 800 V betrieben.

Für die in dieser Arbeit untersuchten Projektilatome wurden zur Präparation eines Strahls aus N-, O-, H- sowie Edelgas-Ionen die entsprechenden reinen Gase verwendet, während für S- und F-Ionen die Quelle mit SF₆-Gas betrieben wurde. Na- und Cl-Ionen wurden durch Verdampfung von NaCl in einem Ar-Plasma erzeugt. Al-, Fe- und Cr-Ionen wurden durch Ionenzerstäubung eines Al-Drahtes bzw. einer (nicht magnetischen) Edelstahl-Schraube gewonnen. Der Draht bzw. die Schraube wurde dabei auf ein negatives Potential gelegt, um die Wahrscheinlichkeit für Stöße mit den Ar⁺-Ionen des Plasmas effektiv zu erhöhen. Li-, K- und Cs-Ionen wurden mit einer β -

²HeatWaveLabs Inc., www.cathode.com.

Eucryptit-Quelle produziert.

Nach der Beschleunigung der Ionen mit der Absaugspannung werden die Ionen im elektrischen Feld einer Einzellinse fokussiert. Danach werden sie in einem 90°-Elektromagneten ((4) in Abb. 3.1a) nach ihrem Verhältnis von Masse zu Ladung separiert. Das Magnetfeld wird von einer Hall-Sonde gemessen, deren Skala auf atomare Massen geeicht ist. Somit kann mit dem Spulenstrom die benötigte Projektionsart direkt über die Massenzahl gewählt werden. Zur Unterscheidung der gewünschten Ionensorte von höher geladenen Ionen mit ähnlichem Verhältnis von Masse zu Ladung wurden Massenspektren aufgenommen, um die Massenlinien anhand ihres Isotopenverhältnisses zu identifizieren.

Die gesamte in Abb. 3.1a) gezeigte Apparatur befindet sich einschließlich der Netzgeräte auf einer hochspannungs isolierten Plattform. Diese kann auf ein Potential von bis zu 100 kV gelegt werden. Die Ionen werden dadurch nach der Massentrennung nachbeschleunigt ((5) in Abb. 3.1a). Auf diese Weise lassen sich für einfach geladene Ionen Projektilenergien von 1,5 keV bis zu 130 keV erreichen. Umgekehrt ist es auch möglich, die Spannung so zu schalten, dass die Ionen abgebremst werden. Da die Geometrie des Beschleunigers auf eine Absaugspannung von 25 keV optimiert ist, lassen sich Ionen mit $E_0 < 2$ keV nur effektiv durch Abbremsung schnellerer Ionen produzieren. Der Aufbau ist auf eine maximale Ausbeute bei einem Verhältnis von Abbremsspannung zu Absaugspannung von ca. 1/4 ausgelegt.

Projektilen, die bereits im Strahlrohr zwischen dem Magneten zur Massentrennung und der Abbremsstrecke am Restgas neutralisieren, werden nicht abgebremst. Um eine Mischung mit dem abgebremsten Strahl zu vermeiden, wurden die Feldplatten der Abbremsstrecke leicht gegen die Strahlachse verkippt, sodass der geladene, abgebremste Strahl und der schon vor der Abbremsstrecke neutralisierte Strahl unter geringfügig verschiedenen Winkeln austreten. Letzteren kann man durch die schmalen Blenden mit geschickter Einstellung des Magnetfeldes für die Massentrennung und der Linse zur Fokussierung so vom abgebremsten Strahl trennen, dass nur dieser in die Streukammer gelangt. Bei jedem neu präparierten abgebremsten Strahl wurde die Reinheit durch die Einstellung von Abbremsspannung = Absaugspannung kontrolliert. Nur Projektilen, die vor der Abbremsstrecke neutralisiert wurden, können dann deren elektrisches Feld überwinden. Wurden die Einstellungen für Magnetfeld und Fokussierung ungünstig gewählt, passieren diese die Blenden und können danach detektiert werden. Sind hingegen keine Projektilen nachweisbar, wohl aber für Abbremsspannung < Absaugspannung, dann handelt es sich um einen reinen abgebremsten Strahl. Der Anteil nicht abgebremster Projektilen wurde so immer unter 5% gehalten.

Um aus dem Ionenstrahl einen neutralen Atomstrahl zu präparieren, wird der Strahl durch ein Gastarget geführt ((16) in Abb. 3.1b). Dieses besteht im Wesentlichen aus einer kleinen heizbaren Kammer mit einem Eintritts- und einem Austrittsspalt und einem präzisen Einlass-Ventil. In

die Kammer kann ein Gas mit gleicher oder ähnlicher Ionisierungsenergie wie die der jeweiligen Projektilsorte geleitet werden, um die Ionen möglichst effektiv zu neutralisieren. Um Alkali-Ionen mit ihren sehr niedrigen Ionisierungsenergien zu neutralisieren, wurde Cs in die Gastarget-Kammer eingebracht und bei ca. 80°C verdampft. Nach Eintritt des Strahls in die Streukammer können die Ionen, welche nicht neutralisiert wurden, durch ein elektrisches Feld ((5) in Abb. 3.1b) aus der Strahlachse gelenkt werden. Der Druck im Gastarget wurde so gewählt, dass die Ausbeute hoch genug ist, der Druck im Strahlrohr zwischen Magnet und Gastarget 10^{-6} mbar aber nicht erreicht, da sonst auch der Druck in der UHV-Kammer ansteigt.

Die Breite der Energieverteilung wird über die Trennbarkeit der Massenspektren mit $< 2\%$ abgeschätzt. Bei hohen Mikrowellen-Leistungen gibt es eine Nullpunktverschiebung durch das Potential des Plasmas von ca. 22 V [220]. An ähnlichen EZR-Quellen wurden Verschiebungen von 8 V [221] und von 12 bis 20 V [222] beobachtet. Die hier präsentierten Messungen erfolgten bei sehr geringen bis minimalen Mikrowellen-Leistungen und mit Projektilenergien $E_0 > 0,4$ keV, daher konnten solche Nullpunktverschiebungen vernachlässigt werden.

3.1.2 Die UHV-Streukammer

Um die Projektilatome an den Atomketten der Oberfläche und nicht etwa an Adsorbat-Schichten zu streuen, erfordern die Experimente Ultrahochvakuum-Bedingungen (UHV), d.h. einen Druck $< 10^{-10}$ mbar. Dies verhindert, dass sich zu schnell nach der Präparation einer reinen Oberfläche und während der Messungen Restgasatome auf der Oberfläche ablagern. Die in Abb. 3.1b gezeigte, für die Geometrie der streifenden Streuung optimierte Apparatur gewährleistet UHV-Bedingungen. In Abb. 3.2 wird deren Aufbau skizziert, die Nummerierung entspricht der aus Abb. 3.1b.

Da sich im Strahlrohr kurz vor dem Eintritt in die Kammer das Gastarget ((16) in Abb. 3.1b) mit einem Druck von bis zu 10^{-6} mbar befindet, bilden zwei differentiell gepumpte Druckstufen ((6) in Abb. 3.1b) den Übergang zum UHV in der Streukammer. Die beiden Druckstufen sind durch Paare von horizontalen und vertikalen Blenden (2) (3) (4) separiert, sie werden jeweils von einer Turbomolekularpumpe (6) evakuiert. Die Schlitzbreite der Blenden beträgt 0,2 mm. Diese dienen gleichzeitig zur Kollimation des einlaufenden Teilchen-Strahls und zur präzisen Einstellung dessen Richtung. Aus dem Blendenabstand von 740 mm ergibt sich eine Strahldivergenz von $0,03^\circ$. Die eigentliche Streukammer wird durch eine Kombination aus Turbomolekularpumpe (11) und einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Titansublimationspumpe (10) evakuiert. Damit wird ein Basisdruck von einigen 10^{-11} mbar erreicht.

Das Target ist auf einem Targethalter (9) an einem Manipulator

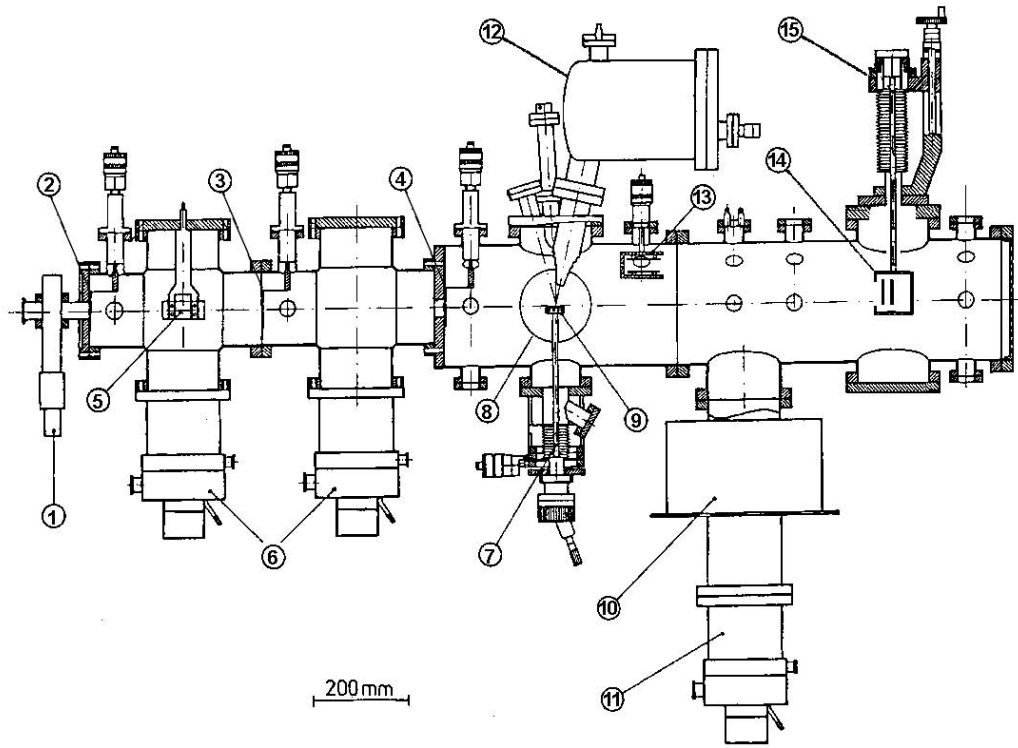


Abb. 3.2: Aufbau der UHV-Streukammer; Strahl läuft von links ein; ① UHV-Schieber, ② ③ ④ Blendenpaare, ⑤ Feldplattenpaar, ⑥ Turbomolekularpumpen, ⑦ Target-Manipulator, ⑧ Flansch für die LEED-Apparatur, ⑨ Targethalter, ⑩ Titansublimationspumpe, ⑪ Turbomolekularpumpe, ⑫ Auger-Spektrometer, ⑬ Feldplattenpaare, ⑭ MCP-Detektor, ⑮ Detektor-Manipulator; aus Ref. [218] mit Anpassungen.

⑦ mit der Oberflächennormale senkrecht zur Strahlachse befestigt. Der Manipulator erlaubt eine Verschiebung in alle drei Raumrichtungen und ein Verkippen der Oberflächenebene zur Strahlachse um bis zu 3° (polar). Weiterhin kann das Target um 360° (azimutal) um seine Oberflächennormale gedreht werden. Diese Rotation kann manuell oder mit einem Schrittmotor computergesteuert erfolgen. Die Ablesegenauigkeit der Skala der Rotation beträgt $\pm 0,2^\circ$, die Genauigkeit des Schrittmotors ist wegen eines Spiels in dessen Schneckenrad-Getriebes auf $\pm 0,08^\circ$ beschränkt. Das Target kann zusätzlich um 90° umgeklappt werden, sodass die Oberflächennormale parallel zum Elektronenstrahl der LEED-Apparatur³ verläuft, die seitlich ⑧ (auf der Rückseite der in Abb. 3.1b gezeigten Ansicht) angebracht ist, da sich über dem Target

³SPALEED, Omicron Nanotechnology GmbH

schon das Auger-Spektrometer⁴ ⑫ befindet.

Um einen neutralen Atomstrahl zu präparieren, werden die Ionen, welche im Gastarget nicht neutralisiert wurden, durch das elektrische Feld eines Plattenpaares ⑤ hinter dem Eintrittspunkt des Strahls in die Kammer aus der Strahlachse gelenkt. Nach der Wechselwirkung mit dem Target erlaubt ein weiteres Paar Feldplatten ⑬, die gestreuten Projektilen nach ihrem Ladungszustand zu trennen.

Der Detektor ⑭ ist an einem Manipulator ⑮ in 660 mm Entfernung vom Target angebracht. Der Manipulator ermöglicht eine vertikale Verschiebung mit einer Genauigkeit von $\pm 0,1$ mm senkrecht zur Strahlachse.

3.1.3 Der Detektor

Als Teilchen-Detektor dient ein ortsauflösender Mikrokanalplatten-Detektor, im Weiteren MCP-Detektor genannt. Mit diesem kommerziellen Detektor⁵ bestehend aus DLD40 Detektionskopf, DLATR6 Verstärker-Diskriminator-Einheit und HM1 bzw. HM1B Time-to-digital-Konverter ist es möglich, eine zweidimensionale Streuverteilung in nur wenigen Minuten aufzunehmen. Mit dem früher verwendeten Channeltron-Detektor hätte man mehrere Stunden gebraucht, um den gleichen Bereich abzurastern, ohne eine vergleichbare Winkelauflösung zu erreichen. Alle in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse wären ohne den ortsauflösenden Detektor nicht zu erzielen gewesen.

3.1.3.1 Funktionsweise

Herzstück des MCP-Detektors sind zwei hintereinanderliegende Mikrokanalplatten [223], die beim Auftreffen eines Ions oder Atoms durch Sekundärelektronenvervielfachung einen messbaren Puls erzeugen. Im Prinzip besteht eine solche Mikrokanalplatte aus tausenden Glasröhrchen, den Mikrokanälen, die innen mit einem Halbleiter-Material beschichtet sind. Trifft ein Elektron, Ion oder Atom auf die Mikrokanalplatte, werden Elektronen aus den Wänden des getroffenen Mikrokanals ausgelöst. Diese werden im elektrischen Feld einer anliegenden Hochspannung entlang des Kanals beschleunigt und treffen erneut auf dessen Wand. Wie bei einem konventionellen Sekundärelektronenvervielfacher werden weitere Elektronen ausgelöst, die wiederum Elektronen auslösen. Auf diese Weise wirken die Kanäle als kontinuierliche Dynoden. Die entstehende Elektronenlawine bleibt dabei auf

⁴CLAM2, VG Scienta

⁵Roentdek Handels GmbH, www.roentdek.com

den Kanal beschränkt, den das einfallende Teilchen getroffen hat, wodurch die Ortsinformation erhalten bleibt. Eine weitere Verstärkung wird durch die zweite nachgeschaltete Mikrokanalplatte erreicht, wobei deren Kanäle bezüglich der Kanäle der ersten Platte etwas geneigt sind. Durch diese sogenannte Chevron-Anordnung [223] wird verhindert, dass positive Ionen, welche am Ausgang auf der Rückseite der hinteren Platte erzeugt werden, zum Eingang der vorderen Platte beschleunigt werden und auf diese Weise eine Rückkopplung verursachen.

Die Elektronenlawine trifft dann auf zwei über die gesamte Fläche senkrecht zueinander gewickelte Drähte und erzeugt in ihnen einen messbares Signal mit einer Pulslänge von einigen Nanosekunden [224]. Je nachdem, an welcher Position die Elektronenlawine auf die Wicklungen trifft, hat das Signal eine unterschiedlich lange Laufzeit zu den Enden der Drähte. Aus der zeitlichen Differenz der Signale von beiden Enden zu einem beim Auftreffen der Elektronenlawine auf die Anode erzeugten Startimpuls, kann man mit der einen Wicklung die x-Koordinate und mit der anderen Wicklung die y-Koordinate des detektierten Teilchens bestimmen (siehe Ref. [224]). Um für die Zeitmessung den Startimpuls von den vier Stoppimpulsen zeitlich zu trennen, sind die Leitungen für die Stoppimpulse von der Verstärker-Diskriminator-Einheit zum Time-to-digital-Konverter deutlich länger als die Leitung für den Startimpuls. Man spricht von „Verzögerungsleitung“ bzw. „Delayline“. Die Ereignisse werden nach den aus den Laufzeitunterschieden errechneten Orten in eine x-y-Matrix eingeordnet. Die aktive Fläche des MCP-Detektors mit einem Durchmesser von 47 mm ist damit in ca. 450×450 Register unterteilt.

Die angelegte Hochspannung zwischen Vorder- und Rückseite der Mikrokanalplatten beträgt 2300 V, wobei die Frontseite auf ein Potential von -150 V gelegt wurde, um die Detektion von Elektronen zu unterdrücken. Um einen Durchgriff des elektrischen Feldes in den Raum vor dem Detektor zu verhindern, wird der MCP-Detektor durch ein Metallgehäuse bzw. ein hochtransparentes Metall-Netz abgeschirmt.

3.1.3.2 Arbeitsbereich

Der MCP-Detektor wurde im sogenannten „transparenten Modus“ mit dem Programm „CoboldPC“ ausgelesen. Die Zählrate ist dabei wegen der Totzeit während der Signalverarbeitung auf < 20 kHz begrenzt [224]. Bei einer Strahlintensität von ca. 10 kHz wird vom Computer noch ca. jedes zweite Ereignis verarbeitet. Bei einer Strahlintensität von ca. 20 kHz wird nicht mal mehr jedes dritte Ereignis ortsaufge-

löst registriert⁶. Höhere Ströme als 10 kHz verkürzen die Messdauer also kaum, schädigen die vordere Mikrokanalplatte aber unnötig. Alle Spektren wurden daher mit Strahlintensitäten von < 15 kHz aufgenommen. Um die Strahlintensität zu reduzieren, wird zwischen den beiden Blendenpaaren ② und ④ (Abb. 3.2), mit denen man die Richtung des Strahls kontrolliert, eine dritte horizontale Schlitz-Blende ③ in den Strahl gefahren⁷ und mit deren Position die vertikale Breite des Strahls solange variiert, bis die gewünschte Intensität erreicht ist.

Strahlintensitäten > 100 kHz können die vordere Mikrokanalplatte langfristig schädigen. Die Nachweiseffizienz im bestrahlten Bereich ist dann für Tage oder Wochen deutlich geringer oder es zeigt sich sogar ein lokal erhöhter Dunkelstrom. Um zu verhindern, dass der direkte Strahl den MCP-Detektor trifft und eine unter Umständen irreversible lokale Schädigung verursacht, wurde die Anlage mit einer zusätzlichen Blende ausgerüstet, mit der man den direkten Strahl hinter dem Target abschatten kann. Da man den MCP-Detektor so auch gefahrlos in der Strahlachse positionieren kann, ist es möglich, Streuverteilungen auch mit sehr kleinen Einfallswinkeln und den resultierenden kleinen Streuwinkeln zu vermessen.

Zusätzlich zu den Totzeit-Effekten bei zu hoher Gesamtintensität kommt es zu lokalen Sättigungseffekten, wenn sich die gestreute Intensität auf einen sehr kleinen Bereich der Mikrokanalplatte konzentriert. Dies ist z.B. bei der Messung der gebeugten Atomstrahlen der Fall, welche kaum breiter sind, als der einlaufende direkte Strahl (siehe z.B. Abb. 5.3b auf S. 121). Zur Kontrolle wurden daher verschiedene Beugungsmuster mit unterschiedlicher Strahlintensität gemessen und verglichen. Für eine Strahlintensität < 1 kHz ergaben sich in der Regel keine Unterschiede. Abhängig von der Anzahl der gebeugten Strahlen wurde die Intensität bei der Aufnahme der Beugungsmuster entsprechend reduziert.

Die Nachweiseffizienz des MCP-Detektors für Ionen mit Projektilenergien $E_0 > 3$ keV entspricht mit ca. 52% der geometrisch offenen Fläche der Mikrokanalplatten [225]. Für geringere Energien sinkt die Nachweiseffizienz exponentiell mit fallendem E_0 (siehe Fig.6 in Ref. [225]). Sie liegt bei $E_0 = 1$ keV schon unter 20%. Zusammen mit der durch den Ionenbeschleuniger bedingten niedrigen Strahlintensität in diesem Energiebereich, wird der zeitliche Aufwand, zweidimensionale Intensitätsverteilungen bei Streuung in Gitterführungsrichtung aufzunehmen, daher ab $E_0 < 0,40$ keV zu hoch.

⁶Nach der Umstellung von HM1 auf HM1B unter „burst“-Ansteuerung erhöhte sich die maximale Zählrate etwas.

⁷Diese „Drosselblende“ beeinflusste weder die Position noch die azimuthale Divergenz des Atomstrahls.

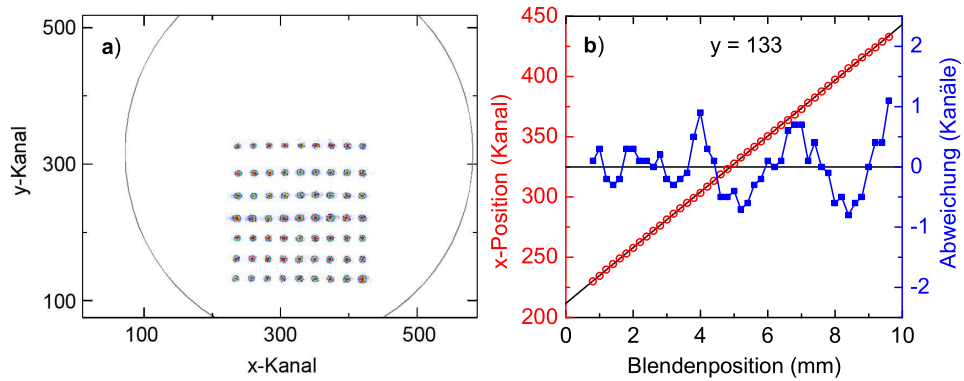


Abb. 3.3: Eichung des MCP-Detektors durch definierte Verschiebung des Atomstrahls. **a)** Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Position des direkten Strahls für 7 verschiedene Positionen der horizontalen Blende bei 9 verschiedenen Positionen der vertikalen Blende. Der Kreis markiert den Rand des aktiven Bereichs des MCP-Detektors. **b)** rote Punkte: Nummer des x-Kanals, in dem das Maximum des direkten Strahls registriert wurde als Funktion der Position der vertikalen Blende bei konstanter horizontaler Blende (y-Kanal Nr. 133) mit linearer Anpassung (schwarze Gerade). Blaue Quadrate: Abweichung der x-Position von der linearen Funktion.

3.1.3.3 Eichung

Die Festlegung des Ursprungs der Winkelskala erfolgte durch Bestimmung der Position des direkten Strahls zu jeder Messung (siehe Abschn. 2.2.1). Für die Eichung der Skala der polaren Austrittswinkel bezüglich der y-Kanäle des Detektors wurde ein Ionenstrahl mittels eines elektrischen Feldes vertikal abgelenkt, so dass er den oberen Bereich des MCP-Detektors traf. Der Detektor wurde dann Schrittweise nach oben verschoben. Dadurch ändert sich der Kanal, in dem der Strahl registriert wird. Der funktionelle Zusammenhang betrug im transparenten Modus mit dem HM1 0,103 mm pro Kanal und mit dem HM1B 0,092 mm pro Kanal vor und 0,0896 mm pro Kanal nach der Umstellung von der ISA- auf die PCI-IO-Karte in Verbindung mit einem Software-Update. Kontrollmessungen zeigten die zeitliche Konstanz der Werte.

Leider war es nicht möglich, den MCP-Detektor seitwärts zu verschieben, um auf dieselbe Art die Skala der azimuthalen Austrittswinkel bezüglich der x-Kanäle zu bestimmen. Daher musste stattdessen der Atomstrahl definiert verschoben werden. Dazu wurde die vertikale Blende des letzten Blendenpaares ④ (Abb. 3.2) schrittweise verstellt, wobei die Blenden des ersten Blendenpaares ② konstant gelassen und die mittleren Blenden ③ entfernt wurden. In Abb. 3.3a werden die mit dem MCP-Detektor registrierten Positionen des direkten Strahls für 9 von 45 verschiedenen Positionen der vertikalen Blende bei sieben

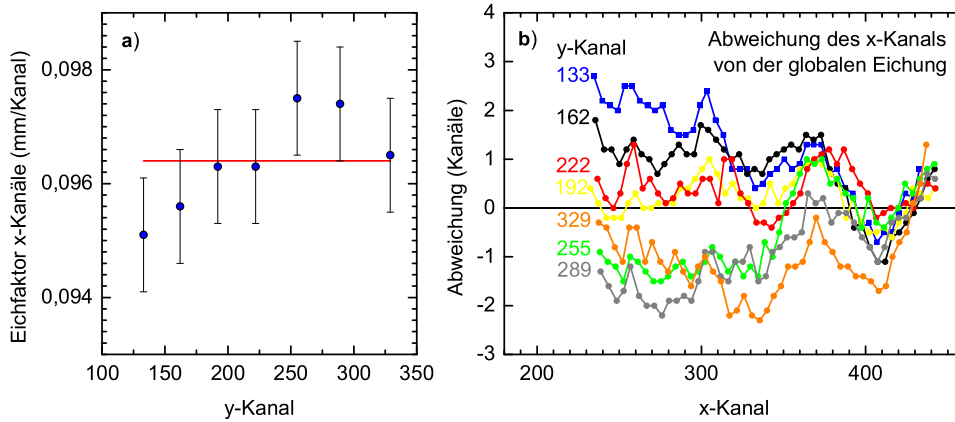


Abb. 3.4: **a)** Mittlere Breite der x-Kanäle des MCP-Detektors für Verschiedene Positionen mit gleichem y-Kanal aus der jeweiligen Regressionsgeraden wie in Abb. 3.3b. Die Fehlerbalken ergeben sich aus der Unsicherheit des Abstands von Detektor und Blenden. Die Rote Grade repräsentiert den Mittelwert („globaler Eichfaktor“). **b)** Abweichung der mit dem globalen Eichfaktor bestimmten Position von der tatsächlichen Position der Punkte der 7 Zeilen aus Abb. 3.3a.

verschiedenen Positionen der horizontalen Blende gezeigt. Der Kreis markiert die Grenzen des aktiven Bereichs des MCP-Detektors. Eine weitere Verlagerung des direkten Strahls mittels der Blenden war nicht möglich. In Abb. 3.3b ist exemplarisch für die unterste Zeile aus Abb. 3.3a (y-Kanal Nr. 133) die Nummer des x-Kanals, in dem das Maximum des direkten Strahls registriert wurde, als Funktion der Position der vertikalen Blende dargestellt. Aus der Position der Blende lässt sich mit dem Abstand der beiden Blendenpaare zueinander und dem Abstand des Detektors zum ersten Blendenpaar die Verschiebung des Atomstrahls auf dem Detektor genau berechnen. Aus dem Anstieg der schwarzen Regressionsgeraden kann man so den Eichfaktor bezüglich der x-Kanäle gewinnen. Die blauen Quadrate geben die Abweichung der jeweiligen x-Position von der Regressionsgeraden an. Die Abweichung beträgt zwar nie mehr als ± 1 Kanal, sie ist aber nicht zufällig sondern folgt einem Muster. Die Abweichungen für die anderen sechs Zeilen aus Abb. 3.3a zeigen einen ähnlichen Verlauf. Die örtliche Auflösung des MCP-Detektors ist also etwas inhomogen.

In Abb. 3.4a werden die Eichfaktoren verglichen, die sich aus der jeweiligen Regressionsgeraden (wie in Abb. 3.3b) für die 7 Zeilen aus Abb. 3.3a ergeben. Die Kanäle scheinen im unteren Bereich des MCP-Detektors ($y = 133$) im Durchschnitt etwas schmaler zu sein als in der Mitte ($y = 329$). Da der obere Bereich der aktiven Fläche des MCP-

Detektors über die Verschiebung des Atomstrahls nicht zugänglich war⁸ (siehe Abb. 3.3a), kann man nur spekulieren, ob sich dieser Trend fortsetzt. Daher wurde statt einer vom y-Kanal abhängigen Funktion der Mittelwert gebildet (rote Gerade in Abb. 3.4a) und als globaler Eichfaktor verwendet. Die sich daraus ergebenden Abweichungen der Punkte der in Abb. 3.3a gezeigten Zeilen sind in Abb. 3.4b dargestellt. Die Abweichung ist immer geringer als ± 3 Kanäle. Der globale Eichfaktor bezüglich der x-Kanäle beträgt 0,0964 mm pro Kanal. Mit dem Abstand des Detektors zum Target von 660 mm ergeben sich daraus $0,00837^\circ$ pro Kanal. Vor der Umstellung auf die neue Software und PCI-IO-Karte betrug der Eichfaktor $0,0088^\circ$ pro Kanal. Die Unsicherheit ergibt sich aus den Abweichungen (Abb. 3.4b) sowie den Unsicherheiten aus den Abständen von Detektor und Blenden und wird mit $< 0,00025^\circ$ pro Kanal abgeschätzt.

Die Genauigkeit der Messung des Abstands der Beugungslinien wäre deutlich zu steigern, wenn man den MCP-Detektor auch seitlich verschieben könnte. Man könnte auf die umständliche Eichung über die Verschiebung des Atomstrahls verzichten, was die Unsicherheiten deutlich reduzieren würde. Es wäre auch möglich, durch definierte Verschiebung des MCP-Detektors dessen gesamte aktive Fläche abzurastern und statt der Verwendung eines globalen Eichfaktors, jedem Kanal eine eigene Breite zuzuordnen.

Das Verhältnis vom Eichfaktor bezüglich der x-Kanäle zu dem für die y-Kanäle beträgt⁹ ca. 1,08. Das hat zur Folge, dass der Halbkreis für die elastisch gestreuten Projektile (siehe Abb. 2.2) in Detektor-Kanal-Koordinaten elliptisch ist. Dies wurde im Auswerte-Programm zur Bestimmung der Ablenkungswinkel θ implementiert und ist in den hier präsentierten Ergebnissen berücksichtigt. Eine Vernachlässigung der Ellipsen-Korrektur hätte je nach θ eine Unterschätzung $< 2,2^\circ$ zur Folge.

3.1.3.4 Wobbel-Korrektur

Da zeitgleich zu den hier vorgestellten Experimenten an der selben Apparatur andere Experimente mit deutlich höheren Strahlintensitäten durchgeführt wurden, zeigte der MCP-Detektor lokal irreversible Abnutzungserscheinungen. Die Sensitivität im vorrangig bestrahlten Bereich war für Energien $E_0 < 3 \text{ keV}$ deutlich herabgesetzt. Für die Bestimmung der Position des Regenbogenwinkels θ_{rb} ist dieser Effekt nicht von Bedeutung, bei der Messung der relativen Intensität der Beu-

⁸Dieses Manko wurde durch den Austausch des Detektor-Manipulators inzwischen behoben.

⁹Man beachte: mittlerweile wurde der Detektor um 90° gedreht und x- und y-Delayline getauscht.

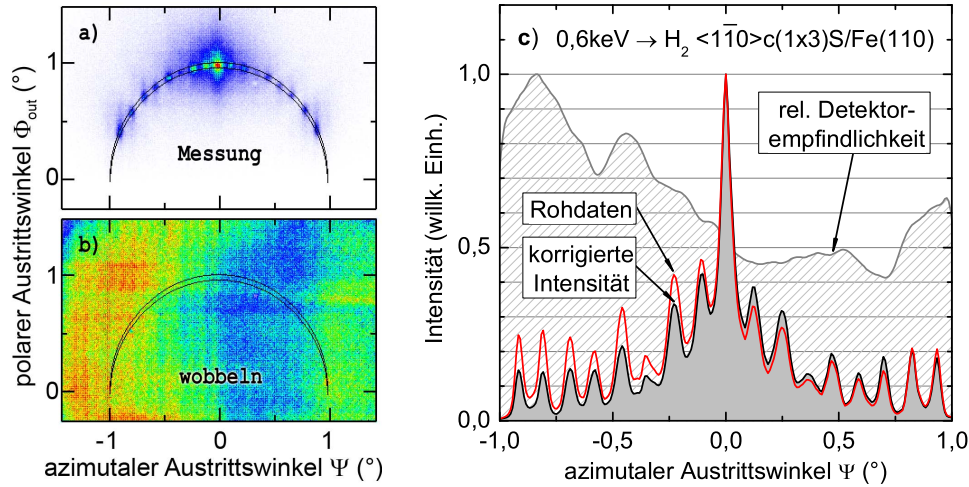


Abb. 3.5: Beispiel für Wobbel-Korrektur. **a)** Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Intensitätsverteilung für Streuung von H₂-Molekülen an einer c(1 × 3)S/Fe(110)-Überstruktur mit $E_0 = 0,6$ keV entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 0,99^\circ$. **b)** Wobbel-Spektrum mit 0,5 keV H⁺. Rot = hohe, blau = geringe Intensität. **c)** Auf Ψ projizierte Intensität innerhalb eines schmalen Intervalls von Φ_{out} entlang des Halbkreises elastischer Streuung mit Radius Φ_{in} (vergl. Abb. 2.2), dessen Grenzen in a) mit schwarzen Halbkreisen markiert sind (rote Kurve), projizierte Intensität aus dem selben Bereich des Wobbel-Spektrums aus b) (graue Kurve mit schraffierter Fläche) und damit korrigierte Intensität (schwarze Kurve mit grauer Fläche).

gungsmaxima muss er jedoch berücksichtigt werden. Dazu wurde eine sogenannte „Wobbel-Korrektur“ durchgeführt. Dafür wird ein Strahl geladener Projektile mit zwei Paaren senkrecht zueinander stehender Feldplatten ¹² über Wechselspannungen im kHz-Bereich periodisch abgelenkt. Auf diese Weise wird der MCP-Detektor gleichmäßig ausgeleuchtet¹⁰. Da es sich um einen ungestreuten Strahl handelt, muss die Intensität sehr gering ($< 0,3$ kHz) gewählt werden, um den oben beschriebenen Effekt der lokalen Sättigung zu vermeiden. Alle Abweichungen von einer homogenen Intensitätsverteilung sind auf lokale Unterschiede der Nachweiseffizienz des MCP-Detektors zurückzuführen. Mit diesem Wobbel-Spektrum kann man nun die Intensität der gemessenen Beugungsmuster korrigieren, indem man einfach durch die normierte Intensität aus dem Wobbel-Spektrum teilt. In Abb. 3.5 wird ein Beispiel für eine Wobbel-Korrektur einer Messung mit einer stark abgenutzten Mikrokanalplatte gezeigt. Abb. 3.5a ist das mit dem MCP-Detektor aufgenommene Beugungsmuster. Die auf den azimutalen Austrittswinkel Ψ projizierte Intensität innerhalb des mit schwarzen Halb-

¹⁰Es können Schwebungsmuster entstehen, die man durch eine leichte Änderung der Frequenz einer der beiden Wechselspannungen vermeiden kann.

kreisen markierten Intervalls polarer Austrittswinkel Φ_{out} ausgehend vom Halbkreis elastischer Streuung mit Radius Φ_{in} (vergl. Abb. 2.2) wird in Abb. 3.5c als rote Kurve gezeigt. Theoretisch sollten die Maxima selber Ordnung die gleiche Höhe haben, d.h. die Verteilung symmetrisch bezüglich $\Psi = 0$ sein. In Abb. 3.5b wird das zugehörige Wobbel-Spektrum gezeigt. Mit einer neuen, unbestrahlten Mikrokanalplatte im MCP-Detektor ist die Intensität homogen verteilt, hier aber ist die Empfindlichkeit im blauen Bereich deutlich geringer als im roten, was die Verzerrung der relativen Höhen der Beugungsmaxima erklärt. Für die Korrektur relevant ist nur die relative Empfindlichkeit in dem Bereich, der bei der zu korrigierenden Messung auch bestrahlt wurde. Die Intensität aus dem in Abb. 3.5b markierten Bereich ist in Abb. 3.5c als graue Kurve mit schraffierter Fläche dargestellt. Die damit korrigierte Intensitätsverteilung wird als schwarze Kurve mit grauer Fläche gezeigt. Diese ist deutlich symmetrischer als die unkorrigierte Verteilung.

Die Wobbel-Korrektur kann die Abweichungen aber nicht vollständig beheben. Dies hat folgende Ursachen: Die Inhomogenität der Nachweiseffizienz ist umso geringer, je höher die an den Mikrokanalplatten anliegende Spannung ist. Und sie ist umso stärker ausgeprägt, je geringer die Energie der Projektile ist. Daher müsste eigentlich jede Streuverteilung mit dem Wobbel-Spektrum passender Energie und Spannung korrigiert werden. Die H^+ -Ionen des gewobbelten Strahls werden aufgrund des elektrischen Feldes auf der Vorderseite des MCP-Detektors noch mit 150 V beschleunigt. Eine Messung mit 0,5 keV H^0 -Atomen ist also nur näherungsweise mit einem Wobbel-Spektrum zu korrigieren, welches mit 0,5 keV H^+ -Ionen aufgenommen wurde. Zudem kann es sein, dass auch die Wahrscheinlichkeit, an der Mikrokanalplatte eine Elektronenlawine auszulösen, für H^+ höher ist als für H^0 . Außerdem können nur Unterschiede in der lokalen Nachweiseffizienz korrigiert werden, die zeitlich konstant sind, d.h. im Zeitraum zwischen Messung und Aufnahmen des Wobbel-Spektrums nicht bereits abgeklungen sind. Daher bleiben die Beugungsmuster auch nach der Wobbel-Korrektur etwas unsymmetrisch. Um die Methode zu überprüfen und die verbleibenden Abweichungen abzuschätzen, wurde für verschiedene Beugungsmuster die Messung an unterschiedlichen Bereichen des MCP-Detektors wiederholt. Dazu wurde die Position des MCP-Detektors verändert und die Lage des einlaufenden Strahls mittels der Blenden verschoben. Die Wobbel-Korrektur ergab immer eine deutliche Verbesserung, unabhängig davon, welche Beugungsordnungen geschädigte Bereiche des MCP-Detektors trafen. Ab $E_0 = 2 \text{ keV}$ ist die lokale Inhomogenität vernachlässigbar bzw. führt die Wobbel-Korrektur zu keiner Verbesserung mehr.

3.2 Präparation der Oberflächen

Voraussetzung für die Oberflächen-Gitterführung von Atomen sind saubere und atomar ebene Einkristall-Oberflächen mit Terrassenbreiten von einigen 100 Å, damit der Streuprozess nicht durch binäre Stöße mit Adsorbat-Atomen bzw. an Defektstrukturen wie Inseln und Stufenkanten dominiert wird. Dabei konnte auf gut erprobte Methoden und langjährige Erfahrungen unser AG bei der Präparation von Oberflächen zurückgegriffen werden.

Die Einkristalle werden zunächst geschnitten und mechanisch poliert¹¹. Dabei wird eine Fehlorientierung der makroskopischen Oberfläche von unter 0,1° erreicht. Anschließend wird die Oberfläche mit Ar⁺-Ionen mit einer Projektilenergie von 25 keV bei einem Strom von ca. 2 µA unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} \approx 2,5^\circ$ bestrahlt. Dieser Vorgang wird Ionenätzen oder „Sputtern“ genannt. Durch das Sputtern werden etwa 0,002 Monolagen/s von der Oberfläche abgetragen [226]. Durch den streifenden Einfallswinkel werden bevorzugt Adsorbat- und Stufen-Atome entfernt. Um die Bildung von Defekten in einer Vorzugsrichtung zu vermeiden, wird der Kristall während des Sputterns kontinuierlich azimuthal um 360° gedreht. Durch die Verwendung der horizontalen Blenden ohne die vertikalen Blenden ist das Profil des Ionenstrahls breiter als der Kristall. Dadurch wird eine gleichmäßige Materialabtragung gewährleistet. Nach jeweils 20 Minuten Sputtern wird das Target geheizt. Dabei setzt die erhöhte thermische Mobilität der Atome einen Umordnungsprozess an der Oberfläche in Gang, der zur Ausheilung der Strahlenschäden und zur Ausbildung größerer Terrassen führt. Da die Defekte nach der mechanischen Präparation bis zu einer Tiefe von einigen µm reichen, müssen entsprechend viele Atomlagen abgetragen, d.h. einige 100 Präparationszyklen aus Sputtern und Ausheilen durchgeführt werden, bis ungestörte Bereiche des Kristalls erreicht werden.

Beim Ausheilen des Kristalls muss auf hinreichend langsame Erwärmung und Abkühlung des Targets geachtet werden, um die Bildung von Defektstrukturen wie Kristallite zu vermeiden. Die Ausheilprozedur kann je nach Material des Targets daher bis zu einer Stunde dauern. Deshalb wurde das Ausheilen automatisiert, indem der Anstieg des Heizstroms durch einen Computer gesteuert wird. Die maximale Temperatur liegt einige 10 K unter der Oberflächen-Schmelztemperatur des jeweiligen Kristalls. Wird die Temperatur zu niedrig gewählt, dann ist

¹¹Al(111), Al(100), Al(110), Ni(110), Fe(110): U. Linke, Forschungszentrum Jülich; LiF(001): CrysTec GmbH, Berlin / J. Sölle, Präparationslabor des Instituts für Physik der HU-Berlin.

die thermische Energie der Oberflächenatome zu gering, um Umordnungsprozesse zu ermöglichen. Die Ausheiltemperaturen werden für den jeweiligen Kristall im experimentellen Teil dieser Arbeit angegeben. Die Temperatur wurde mittels Thermoelement gemessen. Die Genauigkeit wird mit ± 20 K abgeschätzt. Daher musste bei jedem Kristall die Ausheiltemperatur durch schrittweise Erhöhung des maximalen Heizstroms nach einigen Sputterzyklen empirisch gefunden werden. Das Kriterium ist dabei die Reduzierung der polaren Halbwertsbreite der Streuverteilung der Atome.

Streuverteilungen sind sehr sensitiv auf Oberflächendefekte wie Stufenkanten und Inseln. Computersimulationen haben gezeigt, dass Abwärtsstufen zu einem charakteristischen Fuß der Streuverteilung auf der Seite kleiner Winkel führen, während Aufwärtsstufen eine ausgeprägte Flanke bei höheren Streuwinkeln verursachen [177]. Daher ist es möglich, durch Aufnahme von Streuverteilungen die Verbesserung der Qualität der Oberfläche zu kontrollieren. Nach der Präparation des Targets ergibt sich eine schmale Streuverteilung ohne Strukturen an den Flanken, deren Halbwertsbreite hauptsächlich durch die thermisch ausgelenkten Atome der Oberfläche bestimmt wird [177, 227, 228].

In zahlreichen, in der Arbeitsgruppe durchgeführten Experimenten, bei denen die Kristall-Oberflächen auf identische Weise präpariert wurde, ist die Reinheit und die Struktur der Oberfläche überprüft worden [104, 106, 217, 226, 229]. Die Untersuchungen ergaben, dass die Anzahl von Stufenkanten mit mehr als monoatomarer Höhe sehr gering ist [106]. Die LEED-Muster zeigten sehr scharfe Spots bei sehr geringem Untergrund ($<1\%$), was auf eine gut geordnete Oberflächenstruktur mit geringer Defektdichte hinweist [226]. Die Reinheit der Oberfläche wurde mit Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES) untersucht. Während am unpräparierten Target vor allem Sauerstoff und Kohlenstoff nachweisbar waren, konnten nach der Präparation die entsprechenden Signale nicht mehr vom Rauschen unterschieden werden [104].

Um die so präparierte Oberfläche frei von Adsorbatatomen zu halten, wurde an jedem Messtag vor Beginn der Experimente ein weiterer Präparationszyklus gefahren. Unter UHV-Bedingungen, bleibt selbst bei Annahme eines Haftkoeffizienten von 1 die Oberfläche für einige Stunden ausreichend sauber, sodass die Streuung an Adsorbatatomen vernachlässigt werden kann. Zur Kontrolle wurde regelmäßig die erste Messung nach der Präparation am Ende des Messtags wiederholt. Dabei zeigten sich keine signifikanten Unterschiede.

Wie wesentlich eine gut präparierte Oberfläche für axiale Oberflächen-Gitterführung ist, wird in Abb. 3.6 deutlich. Links sind die mit dem MCP-Detektor aufgenommenen Intensitätsverteilungen bei Streu-

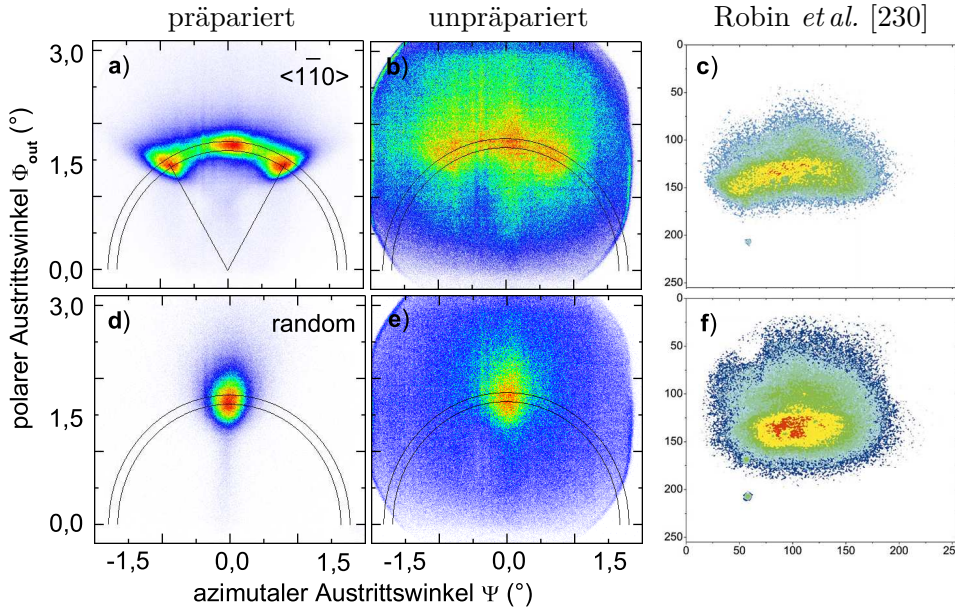


Abb. 3.6: Vergleich der Streuverteilung vor (Mitte) und nach der Präparation (links) bei Streuung von Ne-Atomen mit $E_0 = 10 \text{ keV}$ an Al(111) unter $\Phi_{in} = 1,8^\circ$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (oben) und in Random-Richtung (unten). Zum Vergleich werden rechts die von Robin *et al.* [230] aufgenommenen Verteilungen bei Streuung von 2 keV He^+ an Pd(110) entlang einer c) $\langle 110 \rangle$ - bzw. f) Random-Richtung unter $\Phi_{in} = 5^\circ$ gezeigt.

ung von Ne-Atomen mit $E_0 = 10 \text{ keV}$ an einer präparierten Al(111)-Oberfläche entlang a) einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung und d) in Random-Richtung gezeigt. Die Verteilungen in der Mitte wurden unter gleichen Bedingungen jedoch nach zwei Wochen ohne Präparation der Oberfläche aufgenommen. Bei Streuung entlang der Gitterführungsrichtung in b) sind die Regenbogenmaxima kaum noch zu erkennen. Entlang einer Random-Richtung in e) zeigt sich eine Streuverteilung mit größerer polarer Halbwertsbreite. Zum Vergleich sind rechts die von Robin *et al.* [230] aufgenommenen Verteilungen bei Streuung von 2 keV He^+ an Pd(110) entlang einer c) $\langle 110 \rangle$ - bzw. f) Random-Richtung gezeigt, wobei hier schon ein Untergrund abgezogen wurde. Diese beiden Verteilungen unterscheiden sich nur wenig. In c) sind keine Regenbogenmaxima zu erkennen. Der Streuprozess wird hier offensichtlich durch Stöße mit Oberflächendefekten oder Adsorbatatomen – wie in b) – dominiert.

3.3 Messprozedur und Auswertung

Der Einfallswinkel Φ_{in} muss bei jeder Veränderung der Einstellungen des Target-Manipulators neu bestimmt werden. Dazu wird eine Random-Streuverteilung bei Streuung von Ne- oder Ar-Atomen mit Projektilenergien $< 10 \text{ keV}$ aufgenommen. Die Streuverteilung wird auf die zum polaren Streuwinkel korrespondierende y-Achse projiziert und an die Punkte oberhalb einer einstellbaren Grenze eine Gauß-Verteilung angepasst. Aus der Differenz zwischen der Position des Maximums der Gauß-Verteilung und des Maximums des direkten Strahls wird der Streuwinkel $\Phi_s = 2\Phi_{\text{in}}$ ermittelt. Der Einfallswinkel hängt aufgrund der Verkipfung der Oberflächennormalen gegen die azimutale Drehachse des Manipulators von der azimutalen Ausrichtung des Kristalls ab. Daher werden zur Bestimmung von Φ_{in} bei axialer Oberflächen-Gitterführung zwei Random-Streuverteilungen bei azimutaler Verdrehung bezüglich der Gitterführungsrichtung von mindestens 7° in positiver und negativer Richtung aufgenommen. Der Einfallswinkel bei axialer Ausrichtung wird dann aus dem Mittelwert der Positionen der Maxima der beiden jeweils angepassten Gauß-Funktionen bestimmt. Der Streuwinkel des zentralen Maximums bei $\Psi = 0$ bei axialer Gitterführung wie z.B. in Abb. 2.8d kann unterhalb des Kreises für elastisch gestreute Projektile liegen und sollte daher nicht zur Bestimmung von Φ_{in} herangezogen werden.

Bei jeder Projektil-Target-Kombination wurde zu jeder eingestellten Projektilenergie der Ladungszustand der Projektile nach der Streuung kontrolliert. Dazu werden die Feldplatten hinter dem Target in den Strahlengang gefahren und die Projektile mit einem elektrischen Feld abgelenkt. Die an den Platten anliegende Spannung wird so gewählt, dass die Ionen den Detektor getrennt von den neutralen Projektile treffen, sodass deren Intensitäten direkt miteinander verglichen werden können. Wenn keine geladenen Projektile nachweisbar waren, dann wurde die Neutralisation abgeschaltet, um mit dem Ionenstrahl die Wirkung der Feldplatten zu überprüfen. Wenn der Anteil der geladenen Projektile nicht vernachlässigt werden kann, müssen bei der Messung der Regenbogenwinkel die Ionen mittels der Feldplatten so weit abgelenkt werden, dass sie den Detektor nicht treffen.

Zur Auswertung der Rohdaten wurde das Programm „Auswerte XP“ geschrieben, welches in den binären *.dcf-Dateien des Detektor-Ausleseprogramms „CoboldPC“ das an variabler Position befindliche Spektrum finden, die Intensitätsverteilung grafisch darstellen und eine Vielzahl von Auswertungsprozeduren automatisch oder halbautomatisch durchführen kann. Dazu zählen z.B. die automatische Anpas-

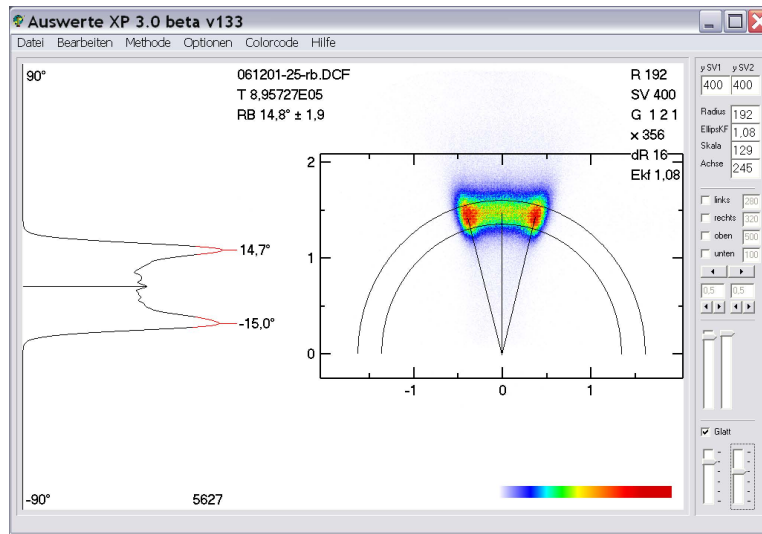


Abb. 3.7: Screenshot des Auswerte-Programms bei der automatischen Bestimmung des Regenbogenwinkels aus den Daten für Streuung von Kr-Atomen mit $E_0 = 10$ keV an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 1,5^\circ$.

sung von Gauß-Kurven, die Ermittlung des Regenbogenwinkels oder die Bestimmung der Anzahl der Ereignisse in einem Fenster einstellbarer Größe für den ganzen Datensatz von Streuerverteilungen einer Messreihe. Dabei werden die Ergebnisse tabellarisch ausgegeben und zu jeder Intensitätsverteilung eine Grafik-Datei erstellt, anhand derer man die automatische Anpassung kontrollieren kann. Abb. 3.7 zeigt z.B. ein Screenshot des Auswerte-Programms bei der Bestimmung des Regenbogenwinkels aus einer Datei für Streuung von 10 keV Kr-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Auf der linken Seite wird die Projektion der Intensität innerhalb des Kreistrings angezeigt. Die automatisch bestimmten Regenbogenwinkel sind markiert.

Experimentelle Ergebnisse

Kapitel 4

Klassische Regenbogenstreuung an Al-Oberflächen

In diesem Kapitel werden die charakteristischen Merkmale der Regenbögen in den klassischen Intensitätsverteilungen bei der Streuung unterschiedlicher Projektilsorten an Metalloberflächen dargestellt. Danailov *et al.* [99] haben in Simulationen gezeigt, dass die klassischen Regenbogenwinkel bei axialer Oberflächen-Gitterführung sehr sensitiv auf das Wechselwirkungspotential reagieren. Daraufhin sind in ersten experimentellen Studien die Regenbogenwinkel bei Streuung schneller Atome an Fe(100) [105, 160], Al(111) [231], Cu(111) [232] und Ag(111) [233] gemessen und mit theoretischen Potentialen verglichen worden. Dabei zeigte sich, dass das ZBL-Potential im relevanten Abstandsreich zu repulsiv ist und das OCB-Potential eine bessere Näherung darstellt [232, 233]. Eine „Inversion“ [161] der experimentellen Daten, d.h. eine eindeutige Bestimmung des Potentials aus den Regenbogenwinkeln ohne theoretische Vorgaben ist nur möglich, wenn Messdaten für viele verschiedene Richtungen vorliegen. Mit dem Ziel, das Potential für die Wechselwirkung von verschiedenen Atomsorten mit den Al-Atomen einer Al-Oberfläche eindeutig zu bestimmen, sind für diese Arbeit die Regenbogenwinkel an Al(111), Al(110) und Al(001) entlang verschiedener Gitterführungsrichtungen vermessen worden. Wenn die Superposition von Paarpotentialen (Abschn. 2.1.2) eine adäquate Näherung ist, dann sollten alle experimentellen Werte mit jeweils demselben Projektilatom-Al-Paarpotential zu beschreiben sein. Wie sich aber herausstellte, ist die Superposition von Paarpotentialen für Metalloberflächen keine gute Näherung im relevanten Energiebereich.

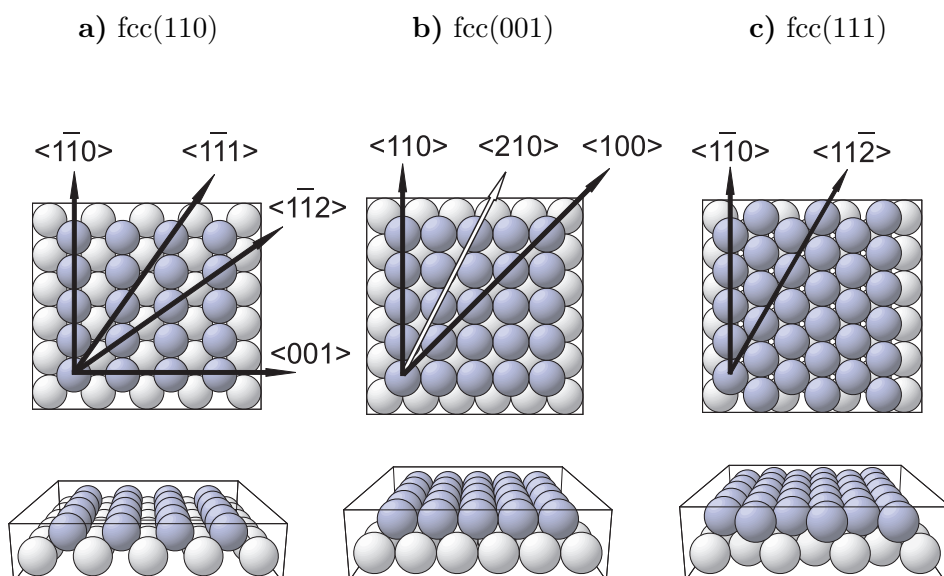


Abb. 4.1: Kugelmodell der obersten zwei Atomebenen der a) fcc(110)-, b) fcc(001)- und c) fcc(111)-Fläche in Draufsicht (oben) und unter streifendem Blickwinkel entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (unten) basierend auf Ref. [234]. Die schwarzen Pfeile markieren die Gitterrichtungen, die experimentell untersucht wurden.

4.1 Struktur und Präparation

Al-Kristalle haben ein kubisch flächenzentriertes Gitter mit einer Gitterkonstante von $4,05 \text{ \AA}$ [235]. Die jeweils obersten zwei Atomebenen der fcc(110)-, fcc(001)- und fcc(111)-Flächen sind in Abb. 4.1 in einem Kugelmodell in Draufsicht (oben) und unter streifendem Blickwinkel entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (unten) dargestellt. Die schwarzen Pfeile markieren die Gitterrichtungen, die experimentell untersucht wurden. Al(110) zeigt eine Relaxation der oberste Atomebene von ca. 9% des Lagenabstandes hin zum Festkörper [236, 237], Al(100) weist keine Relaxation auf [238] und bei Al(111) ist die oberste Atomlage um 3% zum Vakuum verschoben.

Die Oberflächen wurden mittels streifendem Sputtern mit 25 keV Ar^+ -Ionen und anschließendem Ausheilen für ca. zehn Minuten bei ca. 430°C präpariert, wobei die Temperatur vor und nach dem Ausheilen langsam (ca. zwanzig Minuten) erhöht bzw. gesenkt wurde. In vielen in der Arbeitsgruppe durchgeführten Experimenten, bei denen Al-Oberflächen auf identische Weise präpariert wurden, waren keine Verunreinigungen oder Defekte auf der Oberfläche nachweisbar [104, 106, 217]. STM-Aufnahmen eines auf ähnliche Weise präparierten Al(111)-

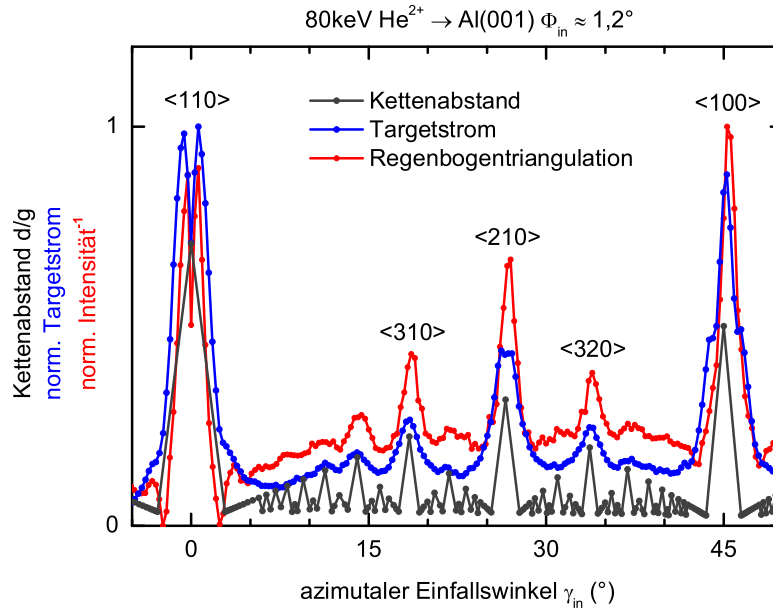


Abb. 4.2: Targetstrom (blau) bei Streuung von He²⁺-Ionen an Al(001) mit $E_0 = 80 \text{ keV}$ als Funktion des azimutalen Einfallswinkels γ_{in} bezüglich einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Die unter gleichen Bedingungen aufgenommene Regenbogen-Triangulationskurve (rot) wird in Abschn. 7.2 besprochen. Zum Vergleich ist der theoretische Abstand d benachbarter Atomketten der jeweiligen Gitterrichtung in Einheiten der Gitterkonstante g gegeben (schwarz).

Kristalls zeigten, dass große Teile der Oberfläche aus Terrassen von einigen hundert Å Breite bestehen [239].

Um die Kristallrichtungen zu identifizieren, wird eine sogenannte Targetstromkurve aufgenommen. Beim Streuprozess lösen die Projektile durch binäre Stöße mit den Elektronen des Targets Elektronen aus. Das Target ist elektrisch isoliert angebracht, was die Messung der nachfließenden Elektronen, des sogenannten Targetstroms erlaubt. Wird der Targetstrom als Funktion des azimutalen Einfallswinkels γ_{in} gemessen, dann ergibt sich eine Targetstromkurve, wie sie in Abb. 4.2 für Streuung von He²⁺-Ionen an Al(001) gezeigt ist (blaue Kurve). Die Breite und die Amplitude der Maxima bezüglich des Untergrunds hängen von der Projektilenergie E_0 und dem Einfallswinkel Φ_{in} ab, die Winkelpositionen und Rangfolge der relativen Höhen jedoch nicht. Die Maxima resultieren aus der Veränderung der Ionen-Trajektorien beim Übergang von planarer zu axialer Gitterführung [240]. Fällt γ_{in} mit einer niedrig indizierten Kristallrichtung der Oberfläche zusammen, dann können mehr Projektile unter die oberste Atomebene „eindringen“ und dort viele Elektronen pro Projektil auslösen [229]. Die Wahrscheinlichkeit, dass Projektile eindringen, ist bei Streuung entlang niedrig

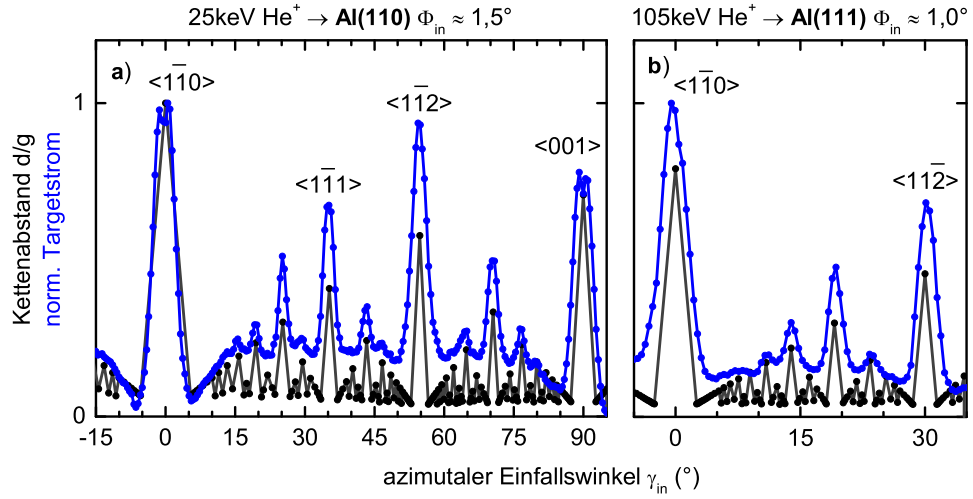


Abb. 4.3: Targetstrom (blau) bei Streuung von He^+ -Ionen an a) Al(110) mit $E_0 = 25 \text{ keV}$ und b) an Al(111) mit $E_0 = 105 \text{ keV}$ als Funktion des azimutalen Einfallswinkels γ_{in} jeweils bezüglich einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Zum Vergleich ist der theoretische Abstand d benachbarter Atomketten der jeweiligen Gitterrichtung in Einheiten der Gitterkonstante g gegeben (schwarz). Die nicht dargestellten Winkelbereiche sind zum dargestellten Bereich symmetrisch.

indizierter Richtungen erhöht, weil hier die Atomketten einen relativ großen Abstand zueinander haben. Somit kann aus den Maxima der Targetstromkurve auf die Gitterführungsrichtungen der Oberfläche geschlossen werden. Die schwarzen Punkte in Abb. 4.2 repräsentieren den theoretischen Abstand d benachbarter Atomketten der jeweiligen zu γ_{in} korrespondierenden Gitterrichtung. Auf diese Weise kann man jedem Targetstrom-Maximum eindeutig eine Gitterrichtung zuordnen. Drei entsprechende Richtungen sind im Strukturmodell Abb. 4.1b markiert. Die Messung der Änderung der Elektronenemmission wurde in den vergangenen Jahren unter dem Namen Ionenstrahl-Triangulation (IST) zu einer aussagekräftigen Methode zur Untersuchung von Überstrukturen und dünnen Filmen weiterentwickelt [229, 241–244]. Die in Abb. 4.2 ebenfalls gezeigte Regenbogen-Triangulationskurve wird später in Abschn. 7.2 diskutiert.

In Abb. 4.3 werden die Targetstromkurven für Al(110) bzw. Al(111) mit den jeweiligen theoretischen Breiten d verglichen. Die Zuordnung der Gitterrichtungen ist auch hier eindeutig. Aufgrund der sechszähligen Symmetrie der Al(111)-Fläche (vergl. Abb. 4.1c) ist der nicht dargestellte symmetrieäquivalente Winkelbereich deutlich größer als bei Al(110) mit nur zweizähliger Symmetrie (vergl. Abb. 4.1a). Insgesamt sind bei Al(111) also nicht weniger Maxima zu beobachten als bei Al(110), jedoch sind $\frac{5}{6}$ symmetrisch äquivalent.

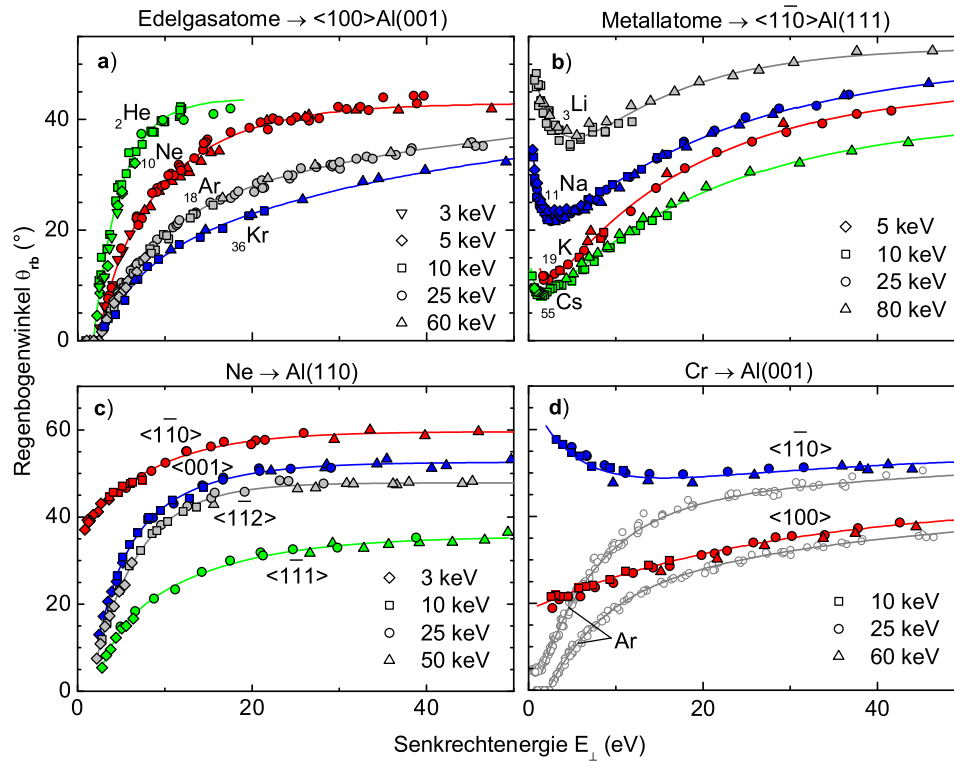


Abb. 4.4: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von a) Edelgas-Atomen an Al(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung, b) Alkalimetall-Atomen an Al(111) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung, c) Ne-Atomen an Al(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -, $\langle 001 \rangle$ -, $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ - und $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung sowie Cr-Atomen an Al(001) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - und einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit jeweils unterschiedlichen Projektilenergien E_0 von 3 bis 80 keV (Symbole). In d) sind zum Vergleich die Ergebnisse bei Streuung von Ar-Atomen unter gleichen Bedingungen eingezeichnet (offene graue Kreise). Die Kurven sollen das Auge führen.

4.2 Regenbögen und Potentiale

In diesem Abschnitt werden die klassischen Regenbögen θ_{rb} analysiert, so wie in Abschn. 2.3.2 beschrieben und in Abb. 2.8 auf S. 29 exemplarisch gezeigt.

4.2.1 Experimentelle Beobachtungen

Der Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} ist stark von der Projektilsorte abhängig. Es können drei verschiedene Gruppen von Atomsorten mit gleichem asymptotischen Verhalten klassifiziert werden:

(I) Bei Streuung von Edelgas-Atomen steigt θ_{rb} monoton mit E_{\perp} , wobei der Anstieg von der Kernladungszahl Z des Projektilatoms abhängt. Als Beispiel sind in Abb. 4.4a die Regenbogenwinkel für Streuung von ${}^2\text{He}$ -, ${}^{10}\text{Ne}$ -, ${}^{18}\text{Ar}$ - und ${}^{36}\text{Kr}$ -Atomen an $\text{Al}(001)$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit unterschiedlichen Projektilenergien E_0 gezeigt. Dabei ist θ_{rb} bei gegebenem E_{\perp} unabhängig von E_0 (außer für Streuung von He-Atomen an $\text{Al}(111)$ [231]). Die Regenbogenwinkel für Projektilatome mit kleinem Z sind bei gleichem E_{\perp} größer als für Atome mit großem Z . Unterhalb einer Schwelle $E_{\perp} > 0$ ist $\theta_{\text{rb}} = 0$. Dieses Verhalten wurde bei Streuung von Edelgas-Atomen bei allen drei Al-Flächen und in verschiedenen Gitterführungsrichtungen beobachtet. Je schmaler der Gitterführungs kanal ist, desto kleiner ist θ_{rb} bei gegebenem E_{\perp} . Zur Veranschaulichung sind in Abb. 4.4c die Regenbogenwinkel bei Streuung von Ne-Atomen an $\text{Al}(110)$ entlang vier verschiedener Gitterführungsrichtungen gegenübergestellt. Die Gitterrichtungen haben nach der Größe der Regenbogenwinkel sortiert die gleiche Reihenfolge wie bei Sortierung nach dem Abstand benachbarter Atomketten (vergl. Abb. 4.3a).

(II) Bei Streuung von Metall-Atomen zeigt die Funktion $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ ein endliches Minimum. Als Beispiel sind in Abb. 4.4b die Regenbogenwinkel für Streuung von ${}^3\text{Li}$ -, ${}^{11}\text{Na}$ -, ${}^{19}\text{K}$ - und ${}^{55}\text{Cs}$ -Atomen¹ an $\text{Al}(111)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung mit unterschiedlichen Projektilenergien E_0 dargestellt. Auch hier gibt es bei gegebener Senkrechterenergie E_{\perp} keine Abhängigkeit von der Projektilenergie E_0 . Bei kleinen Senkrechterenergien steigt der Regenbogenwinkel mit sinkendem E_{\perp} . Bei höheren E_{\perp} gleicht der asymptotische Wert dem Wert für Edelgas-Atome mit vergleichbarer Kernladung Z . Als Beispiel werden in Abb. 4.4d die Regenbogenwinkel für Streuung von ${}^{24}\text{Cr}$ -Atomen an $\text{Al}(001)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - (blau) und einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (rot) mit den Ergebnissen bei Streuung von ${}^{18}\text{Ar}$ -Atomen unter gleichen Bedingungen (grau) verglichen. Bei $E_{\perp} > 30 \text{ eV}$ unterscheiden sich die Regenbogenwinkel nur wenig, jedoch divergieren die Kurven für Edelgas- und Metall-Atome mit sinkendem E_{\perp} .

(III) Bei Streuung von Halogenid-Atomen (von F bis Br) sowie N-, O- und S-Atomen hängt θ_{rb} bei gegebenem E_{\perp} von der Projektilenergie E_0 ab. Für schnellere Projektile mit größerem E_0 gleicht die $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ -Kurve der Kurve bei Streuung von Edelgas-Atomen mit einer vergleichbaren Kernladungszahl. Für langsamere Projektile mit kleinerem E_0 steigt θ_{rb} mit sinkendem E_{\perp} in ähnlicher Weise wie bei der

¹Da Cs-Atome vor der Al-Oberfläche fast vollständig ionisieren, wurde hauptsächlich mit Cs^+ -Strahlen gearbeitet, wobei die Bildladungswechselwirkung bei E_{\perp} berücksichtigt wurde.

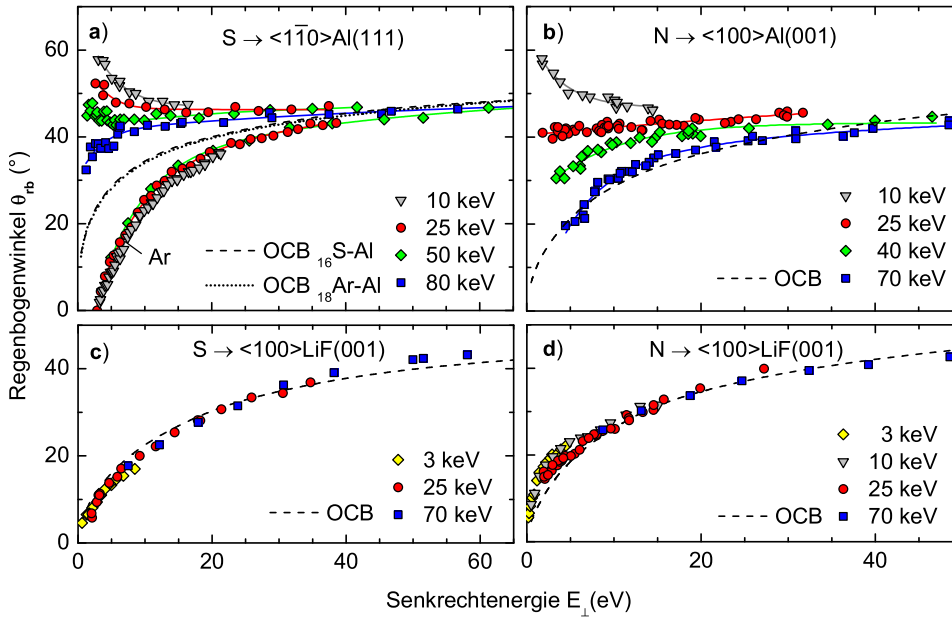


Abb. 4.5: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von S-Atomen a) an Al(111) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung und c) an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit unterschiedlichen Projektilenergien E_0 von 3 bis 80 keV (Symbole). Zum Vergleich sind in a) $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für Streuung von Ar-Atomen unter gleichen Bedingungen und die Ergebnisse der Simulation auf Basis des OCB-Potentials für S (gestrichelte Kurve) und Ar (gepunktete Kurve) eingezeichnet. b) und d): wie a) bzw. c) jedoch für Streuung von N-Atomen entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Die durchgezogenen Kurven sollen das Auge führen.

Streuung von Metall-Atomen. Als Beispiel sind in Abb. 4.5a und b die Regenbogenwinkel für Streuung von ^{16}S -Atomen an Al(111) bzw. ^{7}N -Atomen an Al(001) gezeigt. Je langsamer das Projektil, desto größer ist der Regenbogenwinkel. Das gleiche Verhalten tritt auch bei der Streuung an anderen Metalloberflächen auf wie z.B. Be(0001) (hier nicht gezeigt). Zum Vergleich sind in Abb. 4.5a die Regenbogenwinkel für Streuung von ^{18}Ar -Atomen unter gleichen Bedingungen dargestellt. Zusätzlich sind die Ergebnisse aus der klassischen Trajektoriensimulation auf der Basis des OCB-Potentials für Streuung von ^{16}S - (gestrichelte Kurve) und ^{18}Ar -Atomen (gepunktete Kurve) eingezeichnet. Da sich die Kernladungszahlen mit $Z = 16$ bzw. 18 nur wenig unterscheiden, ähneln sich das S-Al(111)- und das Ar-Al(111)-Potential aus der Superposition von generalisierten Paarpotentialen nach Gl. (2.14). Daher unterscheiden sich die berechneten Regenbogenwinkel kaum. Während für $E_{\perp} > 30$ eV die Superposition von Paarpotentialen auf der Basis des OCB-Potentials eine gute Näherung ist, kann der unterschiedliche Kurvenverlauf für Edelgas-Atome und reaktive Atome bei kleinen E_{\perp} mit

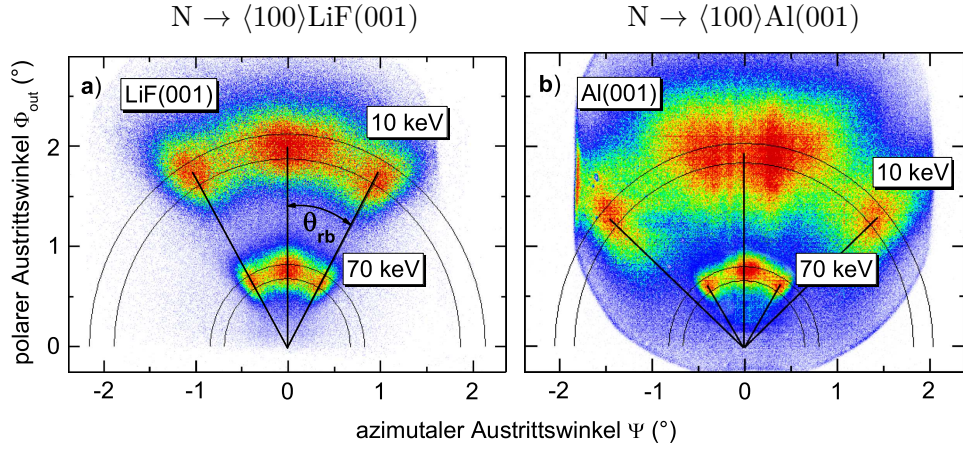


Abb. 4.6: Intensitätsverteilung für Streuung von N-Atomen an a) LiF(001) und b) Al(001) jeweils entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit einer Projektilenergie von $E_0 = 10$ keV bzw. 70 keV. Der Einfallswinkel wurde jeweils so gewählt, dass die Senkrechterenergie bei beiden Projektilenergien gleich war ($E_{\perp} = 13$ eV bei LiF(001) bzw. 12 eV bei Al(001)). Die Positionen der Regenbogenwinkel θ_{rb} sind mit Linien markiert.

diesem Modell nicht beschrieben werden.

Das unterschiedliche asymptotische Verhalten der drei Gruppen von Atomsorten ist eine Eigenschaft der Wechselwirkung zwischen Projektilatom und Metalloberflächen. Bei Ionenkristallen wie LiF(001) gibt es keine systematischen Unterschiede bei der Streuung von Edelgas- und reaktiven Atomen, die $\theta_{\text{rb}}(E_{\perp})$ -Kurven für Projektile mit ähnlicher Kernladungszahl sind vergleichbar. Insbesondere zeigen hier die Regenbogenwinkel bei Streuung von Atomen aus der Kategorie (III) bei gegebenem E_{\perp} keine Abhängigkeit von der Projektilenergie E_0 . Zur Illustration sind in Abb. 4.6 Intensitätsverteilungen für Streuung von N-Atomen mit $E_0 = 10$ keV und $E_0 = 70$ keV an Al(001) und LiF(001) jeweils entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung gegenübergestellt. Der Einfallswinkel wurde dabei so gewählt, dass die Senkrechterenergien E_{\perp} bei beiden Projektilenergien E_0 übereinstimmen. Die Positionen der Regenbogenwinkel θ_{rb} sind mit Linien markiert. Während θ_{rb} bei der Streuung an LiF(001) unabhängig von E_0 ist, unterscheiden sich bei Streuung an der Metalloberfläche die Regenbogenwinkel für $E_0 = 10$ keV und $E_0 = 70$ keV. In Abb. 4.5d und b sind die Regenbogenwinkel aus Messungen wie für Abb. 4.6a bzw. b jeweils als Funktion von E_{\perp} aufgetragen. Den Ergebnissen aus der Streuung von S-Atomen an Al(111) in Abb. 4.5a ist mit Abb. 4.5c ebenfalls eine entsprechende Messreihe für Streuung an LiF(001) gegenübergestellt. Bei LiF(001) sinkt θ_{rb} selbst bei $E_0 = 3$ keV monoton mit fallendem E_{\perp} , genauso wie in der Simula-

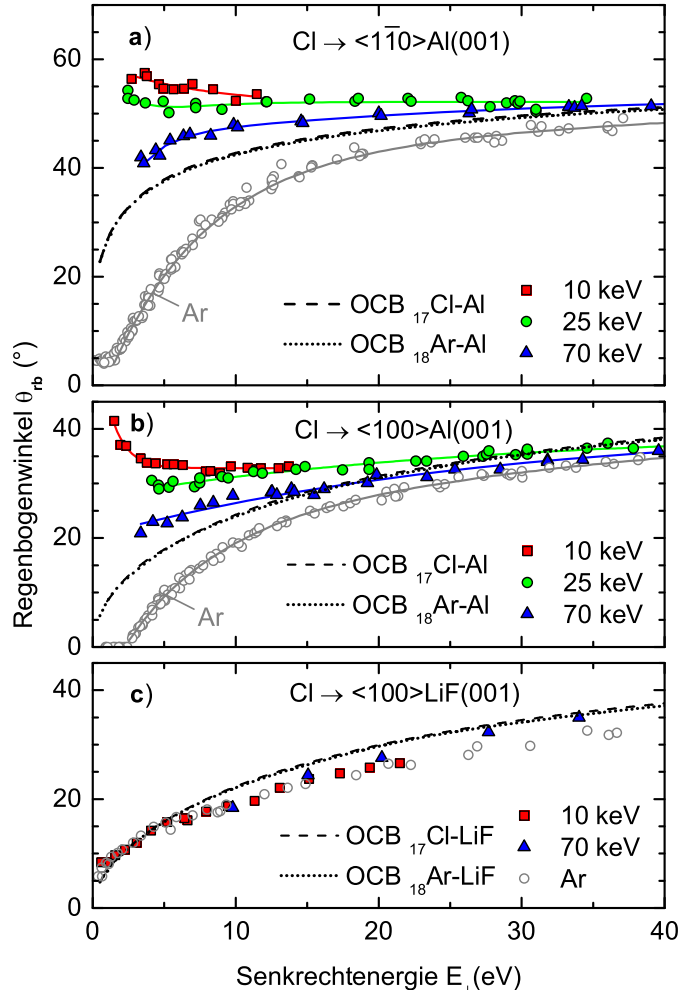


Abb. 4.7: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} bei Streuung von Cl-Atomen an Al(001) entlang a) einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - und b) einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung sowie c) an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit $E_0 = 10$ keV (rote Quadrate), 25 keV (grüne Kreise) und 70 keV (blaue Dreiecke). Zum Vergleich sind $\theta_{rb}(E_{\perp})$ für Streuung von Ar-Atomen unter gleichen Bedingungen (offene Kreise) und die Ergebnisse der Simulation mit OCB-Potential für Cl (gestrichelte Kurve) und Ar (gepunktete Kurve) eingezeichnet. Die durchgezogenen Kurven in a) und b) sollen das Auge führen.

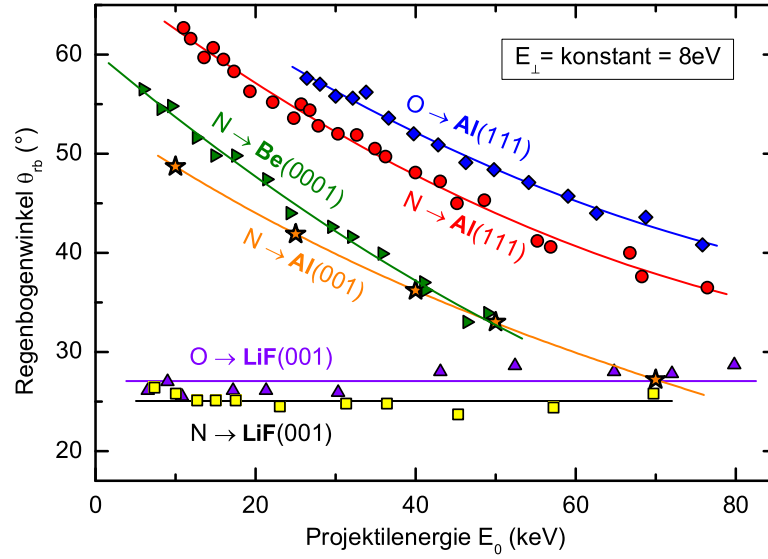


Abb. 4.8: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Projektilenergie E_0 für Streuung von O- und N-Atomen mit konstanter Senkrechtenergie $E_{\perp} = 8 \text{ eV}$ an LiF(001) und Al(001) entlang $\langle 100 \rangle$ sowie an Be(0001) und Al(111) entlang $\langle 110 \rangle$. Rauten: O-Al(111), Quadrate: N-LiF(001), Sterne: N-Al(001), Kreise: N-Al(111), grün geneigte Dreiecke: N-Be(0001), violette Dreiecke: O-LiF(001). Die Kurven sollen das Auge führen.

tion auf Basis des OCB-Potentials (gestrichelte Kurve). Die klassischen Regenbögen bei Streuung an LiF(001) werden in Abschn. 5.1.10 noch ausführlich diskutiert.

Ein vergleichbares Verhalten zeigt sich auch bei Streuung entlang verschiedener Richtungen der gleichen Oberfläche. In Abb. 4.7a und b sind die Regenbogenwinkel bei Streuung von ^{17}Cl -Atomen an Al(001) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - und einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung den Messwerten bei Streuung von ^{18}Ar -Atomen gegenübergestellt. Mit steigendem E_{\perp} konvergieren die Messkurven, bis sie schließlich mit der Simulation auf Basis des OCB-Potentials übereinstimmen. In Abb. 4.7c sind zum Vergleich die Ergebnisse bei Streuung an LiF(001) dargestellt. Der Abstand der $\langle 100 \rangle$ -Atomketten ist bei Al(001) und LiF(001) ähnlich. Daher ähneln sich auch die $\theta_{rb}(E_{\perp})$ -Kurven aus der Simulation mit dem OCB-Potential aus Abb. 4.7b und c. Während sich bei LiF(001) die gemessenen Regenbogenwinkel für ^{18}Ar und ^{17}Cl wie in der Simulation kaum unterscheiden, divergieren sie bei Al(001) mit sinkendem E_{\perp} .

Die Abhängigkeit der Regenbogenwinkel θ_{rb} von der Projektilenergie E_0 bei Atomen aus der Gruppe (III) ist näher untersucht worden, indem für verschiedene Atomsorten an unterschiedlichen Oberflächen θ_{rb} als Funktion von E_0 bei konstanter Senkrechtenergie E_{\perp} aufgenommen

wurde. In Abb. 4.8 ist exemplarisch $\theta_{\text{rb}}(E_0)$ bei $E_{\perp} = 8 \text{ eV}$ für Streuung von O- und N-Atomen an LiF(001) und Al(001) entlang $\langle 100 \rangle$ sowie an Be(0001) und Al(111) entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ gezeigt. Während sich bei den Metalloberflächen die Regenbogenwinkel mit E_0 verkleinern, bleiben sie beim Isolator LiF(001) konstant.

Zusammenfassung: Die klassischen Regenbogenwinkel bei Streuung von Atomen an Metalloberflächen hängen von der Atomsorte ab. Edelgas-Atome und Metall-Atome mit ähnlicher Kernladungszahl zeigen umso größere Unterschiede, je kleiner die Senkrechtenergie ist. Bei Streuung von Halogenid-Atomen sowie N-, O- und S-Atomen hängen die Regenbogenwinkel bei konstanter Senkrechtenergie von der Projektilenergie ab. Bei Streuung an Isolatoroberflächen werden solche Effekte nicht beobachtet.

4.2.2 Interpretation

Der Ursprung für die ausgeprägten Unterschiede im asymptotischen Verhalten der Regenbogenwinkel und der Abweichungen von der Simulation auf der Basis der Superposition von Paarpotentialen kann der Wechselwirkung des Projektilatoms mit dem quasifreien Elektronengas der Metalloberfläche zugeschrieben werden [245]. Die Einbettung eines Atoms in ein homogenes Elektronengas einer bestimmten Dichte n_0 führt zu einer Änderung der atomaren Bindung und damit zu einer Änderung der Gesamtenergie des Systems von Atom und Elektronengas [246, 247]. Um ein Edelgas-Atom in ein Elektronengas zu bringen, muss Energie aufgewendet werden, während bei reaktiven Atomen bei bestimmten Elektronendichten Energie gewonnen wird. Dies führt zu einer zusätzlichen Abstoßung für Edelgas-Atome bzw. zu einer zusätzlichen Anziehung für reaktive Atome bei Wechselwirkung mit einer Metalloberfläche.

Für dicht gepackte Metalloberflächen wie Al(111) oder Al(001) kann das Gas quasifreier Elektronen mit dem sogenannten Jellium-Modell beschrieben werden. In dieser Näherung ist die Elektronendichte n_0 vor der Metalloberfläche nur vom Abstand z zur Oberfläche abhängig [250]. Sie ist gegeben durch

$$n_0(z) = \begin{cases} n_{0B} - \frac{1}{2}n_{0B} \exp(\beta(z - z_j)) & \text{für } z < z_j \\ n_{0B} \frac{1}{2} \exp(-\beta(z - z_j)) & \text{für } z > z_j \end{cases} \quad (4.1)$$

wobei $n_{0B} = 0,0267 \text{ a.u.}$ die Elektronendichte im Al-Festkörper, $\beta = 1,21$ und z_j die Jellium-Kante ist, welche einem halben Lagenabstand entspricht. In Abb. 4.9a ist n_0 als Funktion des Abstands z zu einer

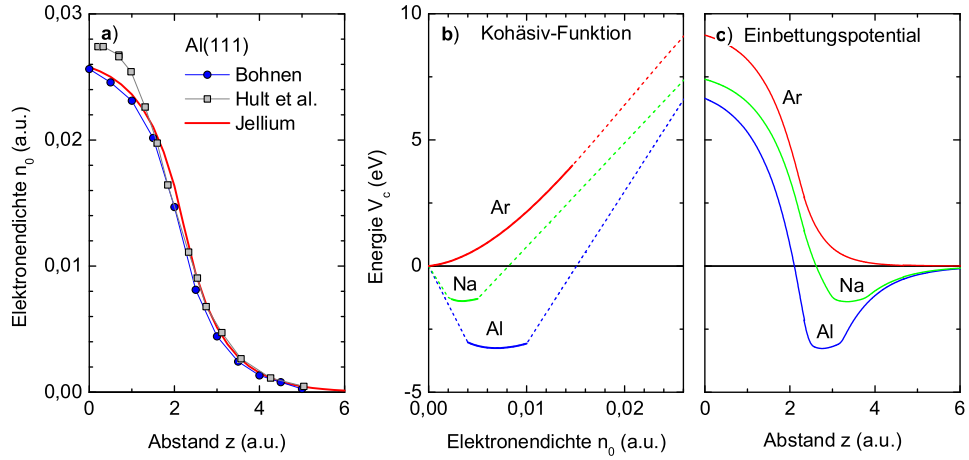


Abb. 4.9: Konstruktion des Einbettungspotentials (EP). **a)** Elektronendichte n_0 als Funktion des Abstands z zur Al(111)-Oberfläche aus einer DFT-Rechnung von Hult *et al.* [248] (graue Quadrate), von Bohnen aus Ref. [249] (blaue Kreise) und in Jellium-Näherung [250] (rote Kurve). **b)** Energie V_c zur Einbettung eines Al-, Na- bzw. Ar-Atoms in ein homogenes Elektronengas als Funktion der Elektronendichte n_0 [246, 247] (durchgezogene Kurven) mit linearer Extrapolation zu kleineren und größeren Dichten (gestrichelte Kurven). **c)** Energie V_c zur Einbettung eines Al-, Na- bzw. Ar-Atoms in das Elektronengas einer Al(111)-Oberfläche als Funktion des Abstands z zur Oberfläche.

Al(111)-Oberfläche dargestellt. Die Jellium-Näherung nach Gl. (4.1) (rote Kurve) ist eine gute Näherung für die DFT-Rechnung von Hult *et al.* [248] (graue Quadrate) bzw. von Bohnen aus Ref. [249] (blaue Kreise).

In Abb. 4.9b ist die Energie V_c aufgetragen, die aufgewendet werden muss bzw. gewonnen wird, wenn ein Al-, Na- bzw. Ar-Atom in ein homogenes Elektronengas der Dichte n_0 eingebettet wird [246, 247]. $V_c(n_0)$ wird auch Kohäsiv-Funktion (cohesive functions) genannt. Die Kohäsiv-Funktionen sind in Ref. [246] bzw. Ref. [247] für viele verschiedene Atome tabellarisch als Parameter von Taylor-Polynomen gegeben, die nur den Bereich um die Minima von $V_c(n_0)$ beschreiben. Daher wurde zu größeren und kleineren Dichten linear extrapoliert (gestrichelte Kurven), sodass $V_c(n_0)$ bei höheren Dichten linear mit n_0 steigt und die Bedingung $V_c(n_0 = 0) = 0$ erfüllt wird. Setzt man für n_0 Gl. (4.1) ein, dann ergibt sich das sogenannte Einbettungspotential (EP), welches in Abb. 4.9c gezeigt ist. Es liefert einen Beitrag im Bereich von einigen eV. Während es für Ar nur abstoßend ist, gibt es bei Na und Al einen Abstandsbereich mit unterschiedlich starker Anziehung. Für die drei verschiedenen Atome resultiert daraus ein unterschiedliches Gesamtpotential aus der paarweisen Abstoßung der Atome und der zusätzli-

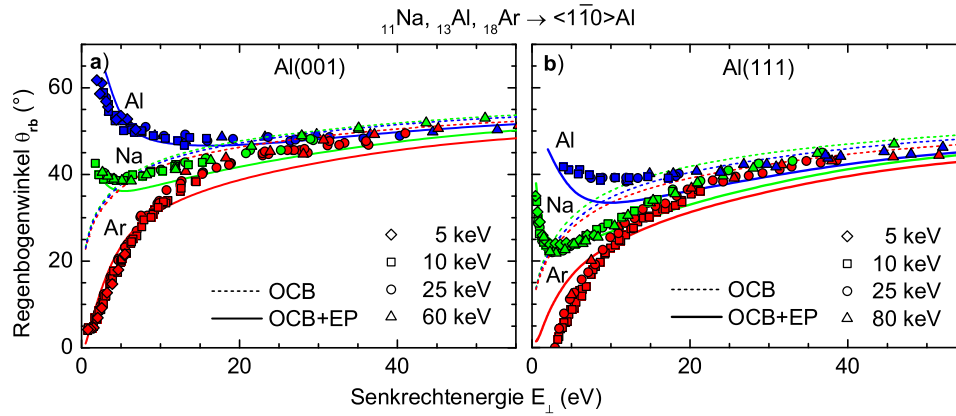


Abb. 4.10: Regenbogenwinkel θ_{TB} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von Al- (blau), Na- (grün) und Ar-Atomen (rot) an a) Al(001) und b) Al(111) mit jeweils unterschiedlichen Projektilenergien E_0 von 5 bis 80 keV (Symbole). Gestrichelte Kurven: Ergebnisse der klassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des OCB-Potentials. Durchgezogene Kurven: Simulation unter Berücksichtigung der Beiträge durch die Einbettung des Projektils in das Elektronengas des Metalls.

chen Anziehung bzw. Abstoßung durch die Wechselwirkung mit dem quasifreien Elektronengas vor der Metalloberfläche.

In Abb. 4.10 sind die Regenbogenwinkel bei Streuung von ^{11}Na -, ^{13}Al -, und ^{18}Ar -Atomen entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung von Al(001) bzw. Al(111) gegenübergestellt. Da sich die Kernladungen der drei Atome nur wenig unterscheiden, gleichen sich auch die jeweiligen Potentiale aus der Superposition von generalisierten Paarpotentialen nach Gl. (2.14). Die mit dem OCB-Potential für Na, Al und Ar berechneten Regenbogenwinkel unterscheiden sich daher auch nur wenig (gestrichelte Kurven). Die $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Atomketten haben in der Al(001)-Fläche einen größeren Abstand als in der Al(111)-Fläche, daher ist das effektive Potential bei Al(001) stärker korrigiert und es ergeben sich größere Regenbogenwinkel als bei Al(111). Für Senkrechtenergien ab $E_{\perp} > 20 \text{ eV}$ werden die experimentellen Daten gut von der Simulation wiedergegeben, da hier die Beiträge aus der Wechselwirkung mit dem Elektronengas vor der Metalloberfläche nicht ins Gewicht fallen. Bei kleineren E_{\perp} werden diese Beiträge aber dominant. Wird die Wechselwirkung mit dem Elektronengas berücksichtigt, indem man das planare Einbettungspotential mit dem Potential aus der Superposition von Paarpotentialen additiv überlagert, dann wird auch das unterschiedliche Verhalten bei kleinen E_{\perp} tendenziell richtig beschrieben (durchgezogene Kurven). Bei der Berechnung des Einbettungspotentials ist in Gl. (4.1) die unterschiedliche Position der Jellium-Kante z_j für Al(001) und Al(111) berücksichtigt worden ($z_j = 1,9$ bzw. $2,2 \text{ a.u.}$). Es wurden

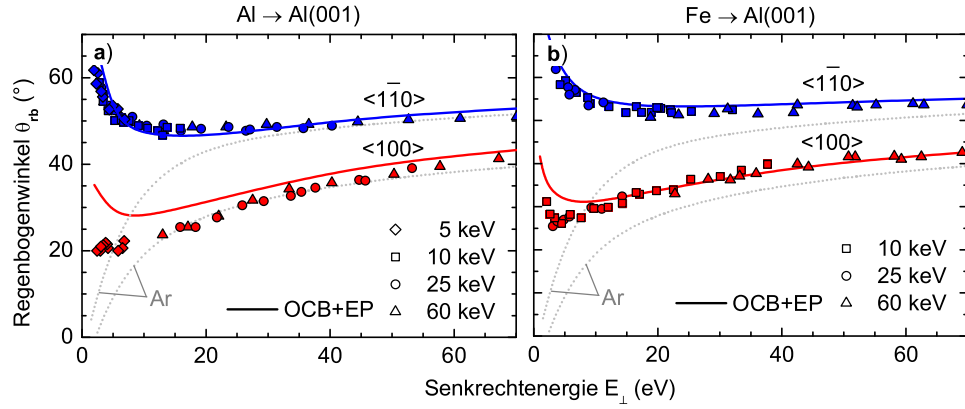


Abb. 4.11: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von a) Al- und b) Fe-Atomen an Al(001) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - (blau) und einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (rot) mit jeweils unterschiedlichen Projektilenergien E_0 von 5 bis 60 keV (Symbole). Durchgezogene Kurve: Ergebnisse der klassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des OCB-Potentials unter Berücksichtigung des Einbettungspotentials. Zum Vergleich sind die Regenbogenwinkel für Streuung von Ar-Atomen unter gleichen Bedingungen gegeben (grau gepunktete Kurve, vergl. Abb. 4.4d).

aber in beiden Fällen die gleichen Kohäsiv-Funktionen (Abb. 4.9b) verwendet. Die Übereinstimmung für Al(001) und Al(111) zeigt die Konsistenz des Ansatzes.

Durch die Berücksichtigung des Einbettungspotentials werden die Regenbogenwinkel auch für verschiedene Richtungen der gleichen Oberfläche gut wiedergegeben. Zur Demonstration sind in Abb. 4.11 die Regenbogenwinkel für Streuung von Al- und Fe-Atomen an Al(001) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - (blau) und einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (rot) gezeigt. Zum Vergleich sind die entsprechenden Werte für Streuung von Ar-Atomen unter jeweils gleichen Bedingungen als grau gepunktete Kurve eingezeichnet (vergl. Abb. 4.4d). Die durchgezogenen Kurven sind das Ergebnis der klassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des OCB-Potentials unter Berücksichtigung des Einbettungspotentials. Die qualitative Übereinstimmung für beide Richtungen zeigt die Konsistenz des Modells.

Für Metalle mit relativ geringer Elektronendichte wie z.B. für Ag mit $n_{0B} = 0,009$ a.u. hat das Einbettungspotential für Edelgas-Atome nur einen geringen Effekt und die Beschreibung auf Basis des OCB-Potentials ist eine gute Näherung [233]. Für reaktive Atome zeigen sich jedoch auch hier Abweichungen, da das Minimum der entsprechenden Kohäsiv-Funktionen bei kleinen Dichten n_0 liegt (siehe Abb. 4.9b).

Die Abhängigkeit der Regenbogenwinkel von der Projektilenergie E_0 für Atome aus der Gruppe (III) (Abb. 4.8) kann als E_0 -Abhängigkeit

der Wechselwirkung zwischen Projektilatom und Elektronengas interpretiert werden. Je höher die Geschwindigkeit des Projektils ist, umso ineffektiver ist das Einbettungspotential. Für schnelle Atome wie z.B. 60 keV N ist die Simulation auf der Basis des OCB-Potentials dann eine adäquate Näherung (gestrichelte Kurve in Abb. 4.5b). Für schwere Atome wie S oder Cl ist die Abhängigkeit von E_0 weniger stark ausgeprägt, da die korrespondierenden Geschwindigkeiten geringer sind (vergl. Abb. 4.5a mit b). Bei Streuung von He-Atomen an Al(111) zeigte sich eine Vergrößerung der Regenbogenwinkel mit E_0 , sodass auch in diesem Fall bei hohen Projektilenergien die Wechselwirkung mit dem Elektronengas vernachlässigbar wird [231]. Ein Ionenkristall hat kein freies Elektronengas, daher zeigen sich bei Streuung an LiF(001) auch keine Effekte aufgrund eines Einbettungspotentials und insbesondere keine Abhängigkeiten von der Projektilenergie bei konstantem E_\perp [251].

Der hier beschriebene Ansatz ist nur eine grobe Näherung. Die Wahl der Extrapolation von $V_c(n_0)$ zu kleineren und größeren Elektronendichten (gestrichelte Kurven in Abb. 4.9b) beeinflusst den Grad der Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation. Außerdem werden die Valenzelektronen in gewisser Weise doppelt berücksichtigt, zum einen beim Elektronengas, zum anderen bei den Paarpotentialen. Zudem zeigen die Flächen konstanter Elektronendichte $n_0(x, y, z) = \text{konst}$ eine Korrugation. Insbesondere bei relativ offene Flächen wie z.B. Al(110) ist die Annahme eines planaren Potentials zur Beschreibung der Wechselwirkung mit dem Elektronengas keine gute Näherung. Statt die 3D-Elektronendichte $n_0(x, y, z)$ mittels DFT zu berechnen wurde von Tiwald [64] gleich das ganze Projektil-Oberflächen-Potential mittels DFT berechnet. Die Ergebnisse werden im folgenden Abschnitt beschrieben.

Zusammenfassung: Die Simulationen auf Basis der Superposition von Paarpotentialen können die systematischen Unterschiede zwischen verschiedenen Projektilsorten mit ähnlicher Kernladungszahl nicht wiedergeben. Die Wechselwirkung zwischen dem Projektilatom und dem quasifreien Elektronengas vor der Metalloberfläche muss bei der Konstruktion eines adäquaten Potentials berücksichtigt werden. Dieser zusätzliche Beitrag zum Gesamtpotential kann ein paar eV betragen und ist abstoßend für Edelgas-Atome und teilweise anziehend für reaktive Atome.

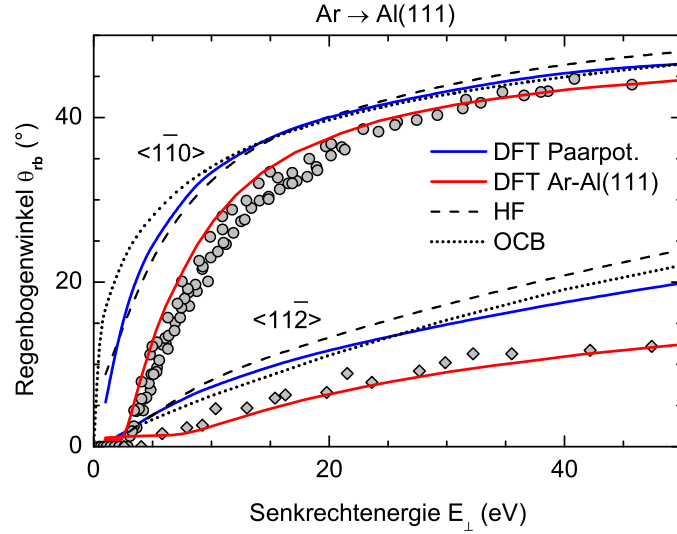


Abb. 4.12: Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von Ar-Atomen an Al(111) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - (Kreise) bzw. einer $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung (Rauten). Kurven: Ergebnis der klassischen Trajektorien simulation basierend auf Ar-Al(111)-Potentialen aus der Superposition von Ar-Al-Paarpotentialen aus OCB-Potential (gepunktete Kurven), HF-Potential von Gärtner [54, 55] (gestrichelte Kurven) und DFT-Paarpotential (blaue Kurven) sowie dem kompletten Projektil-Oberfläche-Potential aus der DFT-Rechnung von Tiwald [64, 252].

4.2.3 DFT-Potentiale

In Abb. 4.12 sind die Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von Ar-Atomen an Al(111) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - (Kreise) und einer $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung (Rauten) dargestellt. Die blauen Kurven sind das Ergebnis der klassischen Trajektorien simulation auf der Basis eines Potentials aus der Superposition von Ar-Al-Paarpotentialen aus einer DFT-Rechnung von Tiwald [64]. Die Kurven unterscheiden sich nur wenig von den Kurven für die entsprechende Simulation mit dem HF-Potential von Gärtner [54, 55] (gestrichelte Kurven) oder dem OCB-Potential (Strich-Punkt-Kurve). Mit keinem dieser Potentiale lässt sich erklären, warum die Regenbogenwinkel erst ab einer Mindestenergie von $E_{\perp} > 3$ eV größer als null sind. Die roten Kurven in Abb. 4.12 sind das Resultat einer Simulation auf der Basis des Ar-Al(111)-Potentials aus der DFT-Rechnung für das gesamte System aus Ar-Atom und Al(111)-Oberfläche von Tiwald [64, 252]. Die Wechselwirkung zwischen Projektilatom und dem Elektronengas vor der Metalloberfläche ist in dieser Rechnung intrinsisch berücksichtigt. Während die Äquipotentialflächen des Potentials aus der Superposition von Paarpotentialen auch bei $E_{\perp} < 3$ eV noch korrigiert sind, woraus ein Regenbogenwinkel mit $\theta_{rb} > 0$ resul-

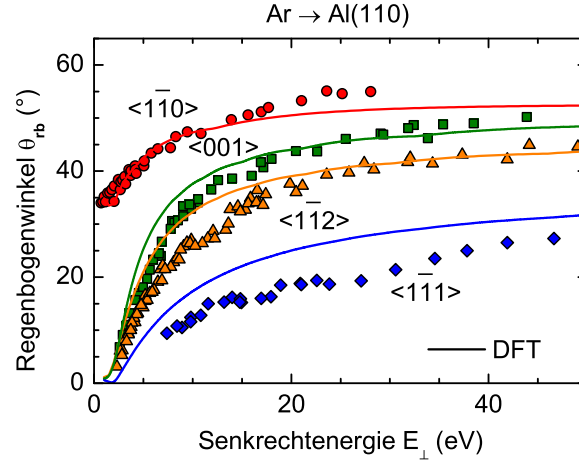


Abb. 4.13: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} für Streuung von Ar-Atomen an Al(110) entlang einer $\langle \bar{1}10 \rangle$ -, $\langle 001 \rangle$ -, $\langle \bar{1}1\bar{2} \rangle$ - und $\langle \bar{1}11 \rangle$ -Richtung. Symbole: Experiment. Kurven: Ergebnisse der klassischen Trajektorien-simulation auf Basis des Ar-Al(110)-DFT-Potentials von Tiwald [64, 252].

tiert, sind sie beim Ar-Al(111)-DFT-Potential in diesem Energiebereich flach, sodass θ_{rb} wie im Experiment null ist. Mit dem DFT-Potential können die Regenbogenwinkel sowohl für die $\langle \bar{1}10 \rangle$ - als auch für die $\langle \bar{1}1\bar{2} \rangle$ -Richtung beschrieben werden.

Eine ähnlich gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation auf Basis eines Projektil-Oberfläche-DFT-Potentials zeigt sich bei der Al(110)-Fläche. In Abb. 4.13 sind die Regenbogenwinkel für Streuung von Ar-Atomen an Al(110) entlang verschiedener Richtungen dargestellt. Die Symbole repräsentieren die Messwerte und die Kurven das Ergebnis der klassischen Trajektorien-simulation mit dem Ar-Al(110)-DFT-Potential von Tiwald [64, 252]. Sowohl die Mindestenergie für $\theta_{rb} > 0$ bei kleinen E_{\perp} als auch die asymptotischen Werte für θ_{rb} bei hohen E_{\perp} stimmen gut mit dem Experiment überein. Bei Verwendung eines Ar-Al(110)-Potentials auf der Basis des OCB-Potentials können im Gegensatz dazu nur die Regenbogenwinkel bei großen E_{\perp} näherungsweise beschrieben werden, für $E_{\perp} < 30$ eV wird θ_{rb} bei allen vier Richtungen überschätzt (hier nicht gezeigt).

Auch das Verhalten der Regenbogenwinkel für Atome aus der Gruppe (II) wird mit einem DFT-Potential korrekt wiedergegeben. Als Beispiel werden in Abb. 4.14 die Regenbogenwinkel für Streuung von Al-Atomen an Al(111) aus dem Experiment (blaue Symbole) mit der Simulation auf Basis des Al-Al(111)-DFT-Potentials von Tiwald [64, 252] verglichen (rote Kurven). Sowohl für die $\langle \bar{1}10 \rangle$ - als auch für die $\langle \bar{1}1\bar{2} \rangle$ -Richtung zeigt sich eine gute Übereinstimmung. Zum Vergleich sind die

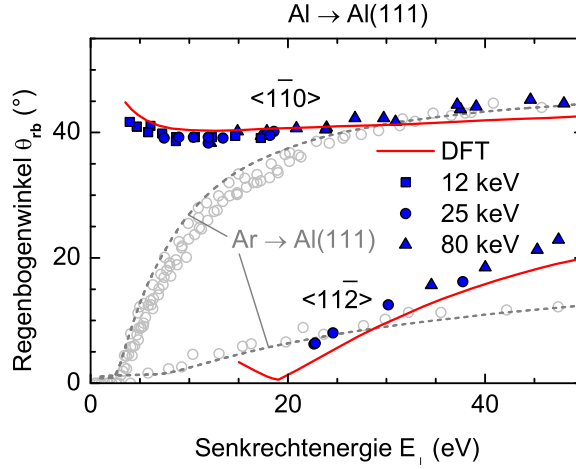


Abb. 4.14: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von Al-Atomen an Al(111) entlang einer $\langle 110 \rangle$ - und einer $\langle 112 \rangle$ -Richtung (blaue Symbole). Rote Kurven: Ergebnisse der klassischen Trajektoriensimulation auf Basis des Al-Al(111)-DFT-Potentials von Tiwald [64, 252]. Zum Vergleich sind die Ergebnisse für Streuung von Ar-Atomen aus dem Experiment (graue Kreise) und der Simulation auf Basis des Ar-Al(111)-DFT-Potentials (grau gestrichelte Kurve) aus Abb. 4.12 eingezeichnet.

Ergebnisse für Streuung von Ar-Atomen aus dem Experiment (graue Kreise) und der Trajektoriensimulation auf Basis des Ar-Al(111)-DFT-Potentials (grau gestrichelte Kurve) aus Abb. 4.12 eingezeichnet.

Da die DFT-Potentiale ein statisches Potential beschreiben, kann die Abhängigkeit von der Projektilenergie E_0 für Projektilatome aus der Gruppe (III) mit diesem Modell nicht erklärt werden. In Abb. 4.15 sind die Regenbogenwinkel für Streuung von N-Atomen an Al(111) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit unterschiedlichen Projektilenergien E_0 von 10 keV bis 80 keV dargestellt. Die gepunktete Kurve repräsentiert das Ergebnis der Simulation auf Basis des N-Al(111)-DFT-Potentials von Tiwald [64, 252]. Die Kurve entspricht dem Grenzfall für $E_0 \rightarrow 0$. Die gestrichelte Kurve repräsentiert das Ergebnis der Simulation auf der Basis des OCB-Potentials ohne Berücksichtigung der Wechselwirkung mit dem Elektronengas. Sie entspricht dem Grenzfall hoher Energien E_0 . Die experimentellen Datenpunkte liegen zwischen diesen beiden Grenzfällen.

Zusammenfassung: Bei der Streuung an Al-Oberflächen zeigen die Simulationen der Regenbogenwinkel auf der Basis von DFT-Paarpotentialen bei geringen Senkrechtenergien genauso große Abweichungen vom Experiment wie bei Verwendung anderer Paarpotentiale. Demgegenüber können die Regenbogenwinkel mit Potentialen aus der DFT-

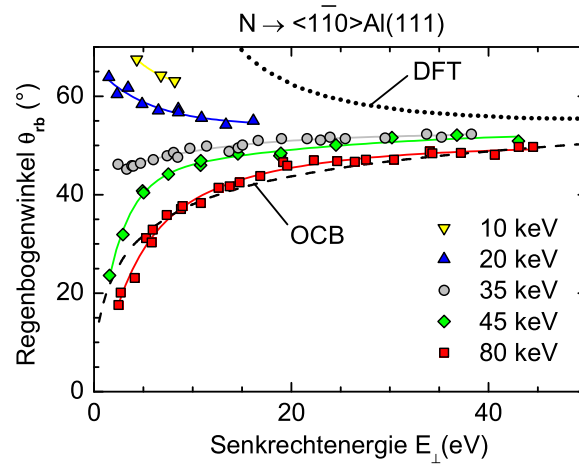


Abb. 4.15: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von N-Atomen an Al(111) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit unterschiedlichen Projektilenergien E_0 von 10 keV (gelb), 20 keV (blau), 35 keV (grau), 45 keV (grün) und 80 keV (rot). Die durchgezogenen Kurven sollen das Auge führen. Gestrichelte Kurve: Ergebnisse der Simulation mit einem Potential aus der Superposition von N-Al-Paarpotentialen aus dem OCB-Potential. Gepunktete Kurve: Simulation auf der Basis des N-Al(111)-DFT-Potentials von Tiwald [64, 252].

Rechnung für das gesamte System von Projektilatom und Oberfläche gut beschrieben werden. Die Superposition von Paarpotentialen ist bei Metalloberflächen bei den für die streifende Streuung schneller Atome relevanten Senkrechtenergien also keine gute Näherung.

4.3 Breite der Streuverteilungen

Einen weiteren Hinweis auf einen abstoßenden Beitrag zum Gesamtpotential für Edelgas-Atome und einen anziehenden Beitrag für reaktive Atome liefert die polare Halbwertsbreite der Streuverteilungen bei der Streuung entlang einer beliebigen hochindizierten (Random) Richtung (Abb. 3.6d). In Abb. 4.16a sind die Intensitätsverteilungen für Streuung von N- und Ne-Atomen an Al(111) unter gleichen Bedingungen als Funktion des polaren Streuwinkels dargestellt. Obwohl beide Projektile eine ähnliche Masse und Kernladungszahl haben, ist die Streuverteilung der N-Atome deutlich breiter als die der Ne-Atome. Erhöht man die Projektilenergie, dann werden die Streuverteilungen für Ne breiter und für N schmaler, bis sie bei $E_0 > 80$ keV eine vergleichbare Breite aufweisen, so wie in Abb. 4.16b gezeigt.

Der dominante Prozess zur Verbreiterung der Streuverteilung ist die Wechselwirkung mit thermisch ausgelenkten Atomen der Ober-

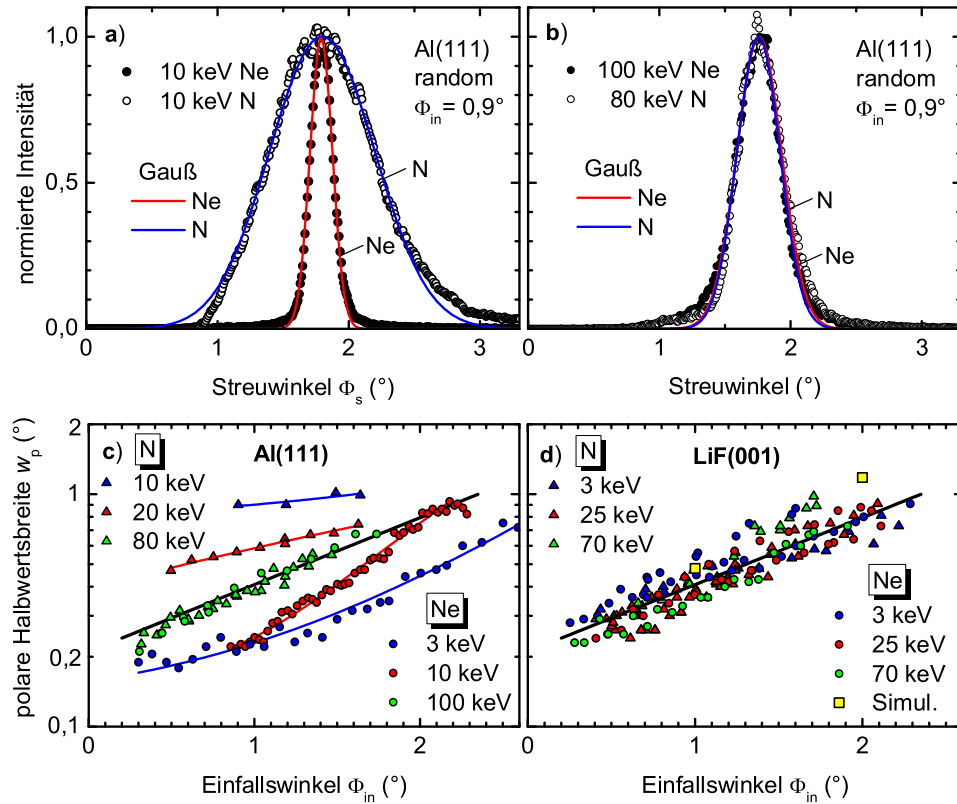


Abb. 4.16: Halbwertsbreite der Streuverteilungen bei Streuung entlang einer Random-Richtung. **a)** Polare Streuwinkelverteilung für Streuung von N- und Ne-Atomen an Al(111) mit einer Projektilenergie von $E_0 = 10$ keV unter einem Einfallswinkel $\Phi_{in} = 0,9^\circ$. Die Kurven repräsentieren die Anpassung von Gauß-Verteilungen. **b)** wie a) jedoch mit $E_0 = 80$ keV (N) bzw. $E_0 = 100$ keV (Ne). **c)** Halbwertsbreite der an die Streuverteilungen angepassten Gauß-Verteilungen als Funktion von Φ_{in} bei Streuung von N- (Dreiecke) und Ne-Atomen (Kreise) an Al(111) für verschiedene E_0 von 3 keV bis 100 keV. Die Kurven sollen das Auge führen. **d)** wie c) jedoch für Streuung an LiF(001). Zum Vergleich sind die schwarze Kurve aus c) und die Ergebnisse einer Simulation aus Ref. [253] (gelbe Quadrate) eingezeichnet.

fläche [97, 177, 228]. Die polare Breite der Random-Streuverteilung steigt dabei näherungsweise exponentiell mit dem Einfallswinkel Φ_{in} in Übereinstimmung mit klassischen Trajektorienimulationen (Fig.3 in Ref. [254], Fig.9 in Ref. [177] oder Fig.4 in Ref. [107]). Die Projektilsorte spielt dabei keine Rolle [254]. In Abb. 4.16c sind die polaren Halbwertsbreiten w_p der an die Streuverteilungen angepassten Gauß-Verteilungen (siehe Abb. 4.16a und b) als Funktion von Φ_{in} für verschiedene E_0 von 3 keV bis 100 keV dargestellt. Während bei Streuung mit hohen Projektilenergien (grüne Symbole) die Halbwertsbreite w_p für N- und Ne-Atome in gleicher Weise mit Φ_{in} steigt, unterscheiden

sich die Kurven bei niedrigen Energien (rote, blaue Symbole). Ne zeigt dabei eine systematisch schmalere Streuverteilung als N. Bei Streuung von O-Atomen an Al(111) zeigt sich das gleiche Verhalten wie bei N (nicht gezeigt). Für Streuung von Cl- und S-Atomen an Al(111) ergibt sich ein ähnliches Bild im Vergleich mit der Streuung von Ar-Atomen (nicht gezeigt).

Bei der Streuung am Isolator LiF(001) treten diese Effekte nicht auf. In Abb. 4.16d sind die Ergebnisse der zur Messung an Al(111) aus Abb. 4.16c korrespondierenden Messung an LiF(001) dargestellt. Hier ist die Halbwertsbreite der Streuverteilung bei gegebenem Φ_{in} unabhängig von der Projektilsorte und der Projektilenergie E_0 . Auch bei Streuung von S-, Cl- und Ar-Atomen an LiF(001) zeigt sich im Bereich von $E_0 = 3 \text{ keV}$ bis 70 keV keine Abhängigkeit von E_0 (hier nicht gezeigt). Die Halbwertsbreite steigt in gleicher Weise mit Φ_{in} wie bei Streuung an Al(111) mit hohen Projektilenergien. Zum Vergleich ist die schwarze Kurve aus Abb. 4.16c in Abb. 4.16d eingezeichnet. Die gelben Quadrate sind das Ergebnis einer Trajektoriensimulation (aus Fig.5 in Ref. [253]). Sie stimmen mit den Messwerten näherungsweise überein.

Das unterschiedliche Verhalten für Edelgas-Atome und reaktive Atome bei Streuung an Al-Oberflächen kann wie folgt interpretiert werden: Je geringer die Projektilenergie E_0 ist, umso effektiver ist das Einbettungspotential. Für reaktive Atome bewirkt das anziehende Einbettungspotential einen geringeren Abstand der nächsten Annäherung und einen größeren mikroskopischen Einfallswinkel, die Streuverteilung ist daher breiter. Umgekehrt sind die Trajektorien von Edelgas-Atomen durch die zusätzliche Abstoßung flacher, der Punkt der dichtesten Annäherung liegt weiter vor der Oberfläche, die Streuverteilungen sind daher schmaler. Bei hohen Projektilenergien ist das Einbettungspotential nicht effektiv und die Streuverteilung bei gegebenem Φ_{in} genauso breit wie bei der Streuung an einer Isolatoroberfläche, die kein Einbettungspotential aufweist.

Zusammenfassung: Bei der Streuung von Atomen an Metalloberflächen entlang einer beliebigen hochindizierten Richtung ist die polare Breite der Streuverteilung bei reaktiven Atomen größer als bei Edelgas-Atomen. Die Unterschiede sinken mit steigender Projektilenergie. Dieses Verhalten kann als ein Effekt der anziehenden bzw. abstoßenden Beiträge zum Gesamtpotential durch die Wechselwirkung mit dem Elektronengas vor der Metalloberfläche interpretiert werden.

Kapitel 5

Beugung an Isolatoroberflächen

5.1 LiF(001)

Die Motivation für die Experimente zur Streuung von Atomen an einer LiF(001)-Oberfläche ergab sich aus den folgenden Überlegungen: Die zuvor untersuchte Wechselwirkung von Atomen mit Metalloberflächen wird bei kleinen Senkrechterenergien durch einen zusätzlichen Beitrag von der Einbettung des Projektil-Atoms in das Elektronengas des Metalls dominiert [231, 245, 251, 255]. Um diese Interpretation zu stützen, sollte zum Vergleich die Wechselwirkung der Projektil-Atome mit der Oberfläche eines Isolators untersucht werden. Da LiF(001) eine ideal terminierte Oberfläche ist [256], wurde dieser Ionenkristall gewählt. Zudem konnte auf Erfahrungen unserer AG aus vorangegangenen Streuexperimenten an LiF(001) [253, 257–259] zurückgegriffen werden. Es stellte sich auch die Frage, wie sich die Ionizität der F^- - und Li^+ -Ionen auf das Wechselwirkungspotential auswirkt. Die verschiedenen theoretischen Potentiale für die Wechselwirkung von Edelgas-Atomen mit LiF(001) unterscheiden sich deutlich [253]. Bisher gab es keinen experimentellen Befund, welches Potential besser geeignet ist, um die streifende Streuung zu beschreiben. Diese Fragen sollten mittels klassischer Regenbogenstreuung untersucht werden.

Entgegen den Erwartungen wurden bei Streuung von leichten Atomen und Molekülen an LiF(001) mit Projektilenergien von einigen keV in den experimentellen Intensitätsverteilungen Muster beobachtet, die nur im Sinne quantenmechanischer Beugung erklärbar sind [24, 25, 260, 261]. Unabhängig davon wurden im selben Zeitraum von Rousseau *et al.* ähnliche Messungen an LiF(001) und NaCl(001) durchgeführt und in gleicher Weise interpretiert [26, 27]. Seit Beginn der

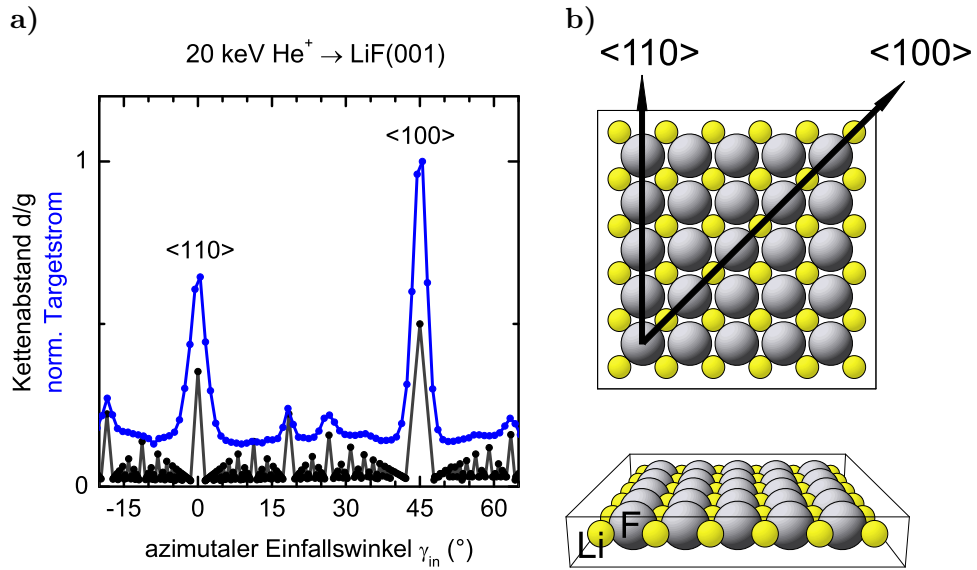


Abb. 5.1: **a)** Targetstrom bei Streuung von He⁺-Ionen an LiF(001) mit $E_0 = 20$ keV als Funktion des azimutalen Einfallswinkels γ_{in} bezüglich einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (blau) und theoretischer Abstand d benachbarter Atomketten in der jeweiligen Gitterrichtung in Einheiten der Gitterkonstante g (schwarz). Die nicht dargestellten Winkelbereiche sind zum dargestellten Bereich symmetrisch. **b)** Kugelmodell der obersten Atomebene der LiF(001)-Oberfläche in Draufsicht (oben) und unter streifendem Blickwinkel entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (unten) [234]. Die schwarzen Pfeile markieren die Gitterrichtungen, die experimentell untersucht wurden.

Streuung von Atomen an Oberflächen vor mehr als 80 Jahren zeigten sich an Alkalihalogeniden wie LiF(001) bei Projektilenergien im thermischen Bereich (einige zehn meV) Beugungseffekte für H-, He- und Ne-Atome sowie für H₂- und D₂-Moleküle [6, 138, 186, 256, 262–265]. Für Projektilenergien im Bereich von einigen keV waren solche Beugungseffekte bisher unbekannt. Dieses und die folgenden Kapitel konzentrieren sich daher auf die Darstellung und Diskussion dieser Beugungseffekte.

5.1.1 Struktur und Präparation

LiF ist ein Ionenkristall mit NaCl-Struktur. Bei Zimmertemperatur beträgt die Gitterkonstante $g = 4,02617$ Å [266]. Die Oberfläche ist festkörperterminiert mit $g = (4,023 \pm 0,008)$ Å [256]. Die Ionen sind einfach geladen [267] mit Li⁺ als Kation und F[−] als Anion. In Abb. 5.1b ist das Kugelmodell [234] der obersten Atomebene der LiF(001)-Oberfläche abgebildet. Im unteren Teil von Abb. 5.1b ist das Modell unter streifendem Blickwinkel entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung dargestellt, um die $\langle 110 \rangle$ -Atomketten hervorzuheben. Die Untergitter der Anionen und Kationen

zeigen eine unterschiedliche Relaxation, die „Rumpling“ genannt wird. Dabei ist das Li^+ -Untergitter bezüglich des F^- -Untergitters zum Festkörper hin verschoben [268]. Das Rumpling wird in Abschn. 5.1.7 genauer analysiert. LiF ist ein Isolator und hat bei den Alkalihalogeniden mit 14,4 eV die größte Bandlücke [269]. Um die Aufladung des Kristalls bei der Streuung von Ionen – z.B. während des Sputterns – und eine dadurch resultierende Ablenkung des Ionenstrahls zu vermeiden, wurde die Ionenleitfähigkeit des LiF-Kristalls durch Heizen auf ein ausreichendes Maß erhöht. Die hier vorgestellten Streuexperimente wurden – bis auf die Fälle, bei denen die Temperatur explizit angegeben ist – bei Zimmertemperatur mit neutralen Projektilen durchgeführt, deren Trajektorien nicht durch makroskopische elektrische Felder beeinflusst werden.

Die LiF(001)-Oberfläche wurde durch Zyklen streifenden Sputterns mit 25 keV Ar^+ -Ionen bei einer Target-Temperatur von ca. 250 °C und anschließendem Ausheilen bei Temperaturen von ca. 350 °C präpariert. Die polare Halbwertsbreite der Streuverteilung verringerte sich, bis sie nach ca. 300 Zyklen (etwa zwei Wochen) eine Sättigung erreichte¹. Das definierte Profil der Streuverteilung deutet dabei auf Terrassenbreiten von mehreren hundert Å hin [177]. Aus vorangegangenen Untersuchungen unserer AG an LiF(001) [253, 257–259] war bekannt, dass unter diesen Bedingungen eine saubere atomar ebene Oberfläche vorliegt.

In Abb. 5.1a ist der Targetstrom bei Streuung von He^+ -Ionen an LiF(001) mit $E_0 = 20$ keV als Funktion des azimutalen Einfallswinkels γ_{in} bezüglich einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung dargestellt (blau). Die nicht gezeigten Winkelbereiche sind zum gezeigten Bereich symmetrisch. Anhand der Winkelposition der Maxima können die Gitterführungsrichtungen identifiziert werden. Zum Vergleich ist der theoretische Abstand d benachbarter Atomketten der jeweiligen Gitterrichtung in Einheiten der Gitterkonstante g gegeben (schwarz). Die beiden experimentell untersuchten Gitterführungsrichtungen $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ sind im Kugelmodell in Abb. 5.1b mit schwarzen Pfeilen markiert.

5.1.2 Winkelposition der Beugungslinien

In Abb. 5.2 werden exemplarisch Intensitätsverteilungen für die Streuung von ^4He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit verschiedenen Projektilenergien E_0 unter sonst gleichen Bedingungen gezeigt. Bei hoher Projektilenergie – wie $E_0 = 9,00$ keV in Abb. 5.2a – und großem Einfallswinkel Φ_{in} sowie für schwere Projektilatome erge-

¹Für Streuung von Ar unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 1,6^\circ$ betrug die polare Halbwertsbreite ca. $0,4^\circ$, unabhängig von der Projektilenergie.

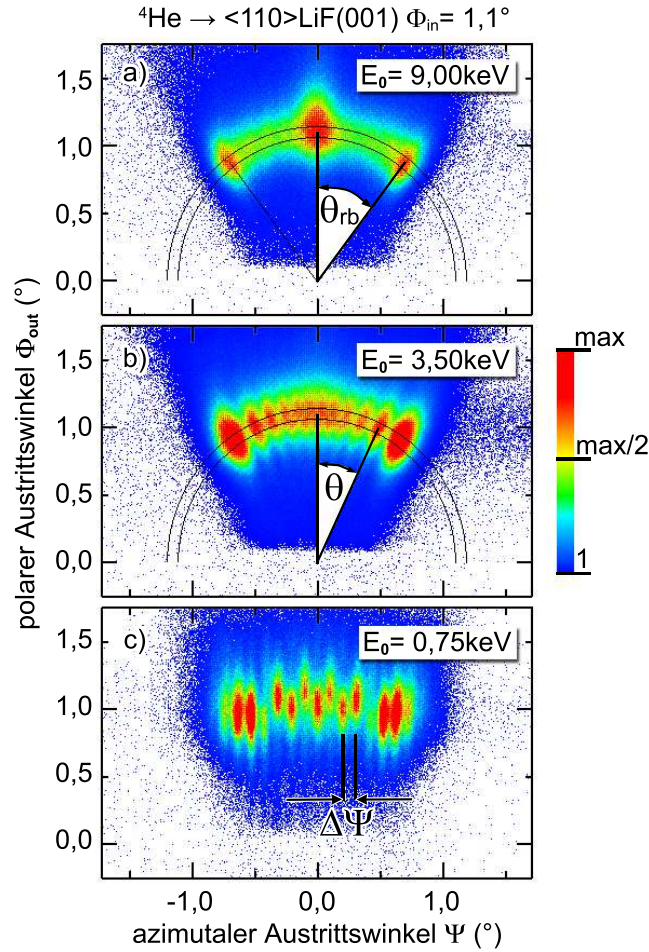


Abb. 5.2: Intensitätsverteilungen bei Streuung von ${}^4\text{He}$ -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit einer Projektilenergie von a) $E_0 = 9,00 \text{ keV}$, b) $3,50 \text{ keV}$ und c) $0,75 \text{ keV}$ unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 1,1^\circ$. Markiert sind Regenbogenwinkel θ_{rb} , Ablenkwinkel θ und Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$.

ben sich klassische Intensitätsverteilungen mit den charakteristischen Maxima am größten Ablenkwinkel, dem Regenbogenwinkel θ_{rb} , wie sie auch bei Streuung an Metalloberflächen zu beobachten sind (vergl. Abb. 2.8d). Diese klassischen Verteilungen bzw. Regenbogenwinkel werden in Abschn. 5.1.10 noch ausführlich analysiert. Mit Verringerung der Projektilenergie E_0 verändert sich die Intensitätsverteilung der He-Atome von der klassischen Verteilung, welche nur die beiden Regenbogenmaxima zeigt, hin zu einer Verteilung mit zusätzlichen Maxima (siehe Abb. 5.2b für $E_0 = 3,50 \text{ keV}$). Die zusätzlichen Maxima haben augenscheinlich ihren Ursprung am Schnittpunkt zwischen Targetebene und Einfallsebene – genau wie die Regenbogenmaxima – und sind

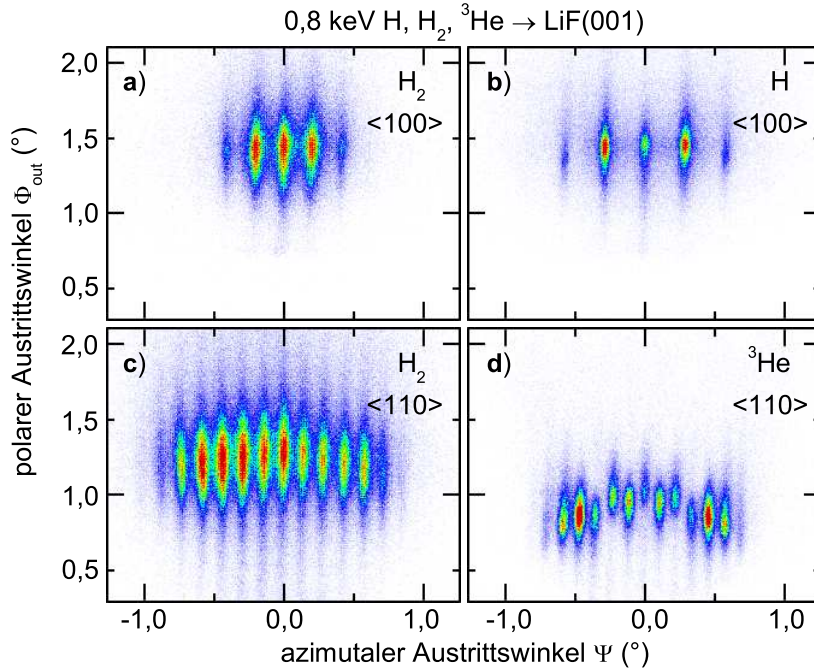


Abb. 5.3: Beugungsmuster für Streuung von H_2 -Molekülen (links) sowie ^3He - und H -Atomen (rechts) an $\text{LiF}(001)$ bei gleicher Projektilenergie $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ - (oben) und einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (unten) unter a) und b) $\Phi_{\text{in}} = 1,48^\circ$, c) $1,29^\circ$ sowie d) $0,99^\circ$.

daher auch durch einen bestimmten Ablenkwinkel $\theta < \theta_{\text{rb}}$ gekennzeichnet. Diese zusätzlichen Maxima sind die in Abschn. 2.3 eingeführten überzähligen Regenbögen, die durch die Interferenz zwischen verschiedenen Trajektorien mit gleichem Ablenkwinkel θ vom Typ A und B (siehe Abb. 2.21 auf S. 62) hervorgerufen werden. Die überzähligen Regenbögen werden in Abschn. 5.1.8 noch detailliert besprochen. Wird E_0 weiter verringert, dann zeigen sich wohldefinierte Beugungsmuster in Form von äquidistanten Linien hoher Intensität, welche parallel zur Oberflächennormale und damit entlang konstanter azimuthaler Austrittswinkel Ψ verlaufen. Solch ein Beugungsmuster wird in Abb. 5.2c für $E_0 = 0,75 \text{ keV}$ unter sonst gleichen Bedingungen wie in Abb. 5.2a bzw. b gezeigt. Die Linien hoher Intensität werden im Weiteren „Beugungslinien“ oder auch „Bragg-Reflexe“ genannt. Denn ursächlich für das Auftreten der Bragg-Reflexe ist die Interferenz zwischen symmetrisch äquivalenten Trajektorien vom Typ A und A^* (Abb. 2.21), wobei konstruktive Interferenz nur dann auftritt, wenn die Bragg-Bedingung Gl. (2.63) erfüllt ist.

Der mittlere Abstand zwischen benachbarten Beugungslinien wird im Folgenden „Beugungslinienabstand“ $\Delta\Psi$ genannt (Abb. 5.2c). Die

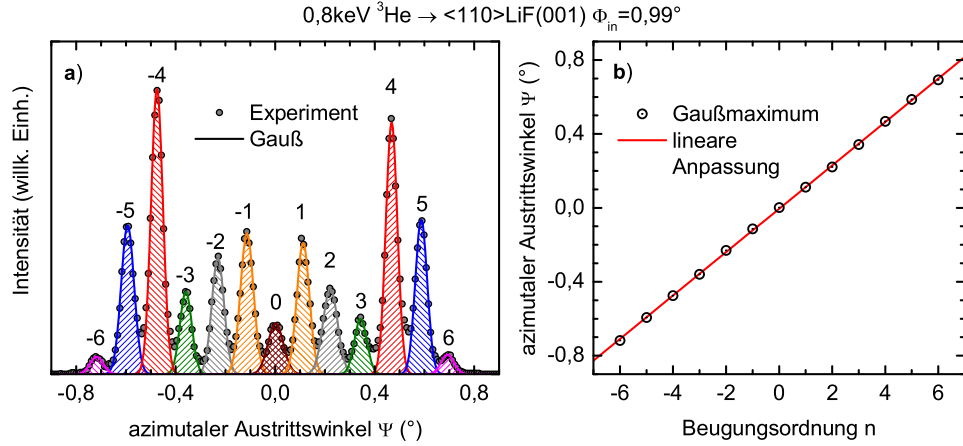


Abb. 5.4: Bestimmung des Beugungslinienabstandes $\Delta\Psi$ aus den Beugungsmustern. **a)** Projizierte Intensität aus Abb. 5.3c als Funktion des azimutalen Austrittswinkels Ψ für Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 0,99^\circ$ mit $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ (Kreise) und beste Anpassung jeweils einer Gauß-Kurve an jedes Beugungsmaximum (farbige Kurven). Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n . **b)** Winkelposition Ψ des Maximums der Gauß-Kurve als Funktion von n (Kreise) und beste Anpassung einer linearen Funktion (rote Gerade).

Winkelposition der Beugungslinien und damit deren Abstand ist durch Gl. (2.63) gegeben, hängt also vom Abstand symmetrisch äquivalenter Positionen bzw. Atomketten der Oberfläche d und der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} , jedoch nicht vom Einfallswinkel Φ_{in} ab. In Abb. 5.3 sind die Beugungsmuster für Streuung von H_2 -Molekülen, H-Atomen und ^3He -Atomen an LiF(001) bei gleicher Projektilenergie $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ gegenübergestellt. Aufgrund ihrer unterschiedlichen Masse haben die drei Projektile eine unterschiedliche De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} . Daher zeigt das H_2 -Molekül (Abb. 5.3a) aufgrund seiner höheren Masse unter den selben Bedingungen einen geringeren Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als das H-Atom (Abb. 5.3b). Bei gleichem λ_{dB} ist $\Delta\Psi$ bei Streuung entlang des breiteren $\langle 110 \rangle$ -Gitterführungskanals (Abb. 5.3c) kleiner als beim schmaleren $\langle 100 \rangle$ -Kanal (Abb. 5.3a). Im Gegensatz zur Streuung von H_2 -Molekülen entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung unterscheiden sich bei Streuung von He-Atomen die relativen Intensitäten der Bragg-Reflexe (Abb. 5.3d).

Abb. 5.4a zeigt die auf die Achse der azimutalen Austrittswinkels Ψ projizierte Intensität aus Abb. 5.3d zusammen mit der besten Anpassung jeweils einer Gauß-Kurve an jedes Beugungsmaximum. Die relative Intensität der Maxima wird in Abschn. 5.1.4 noch im Detail diskutiert. Der Abstand benachbarter Beugungslinien ist im Rahmen der Genauigkeit der Ortsauflösung des MCP-Detektors äquidistant. Die

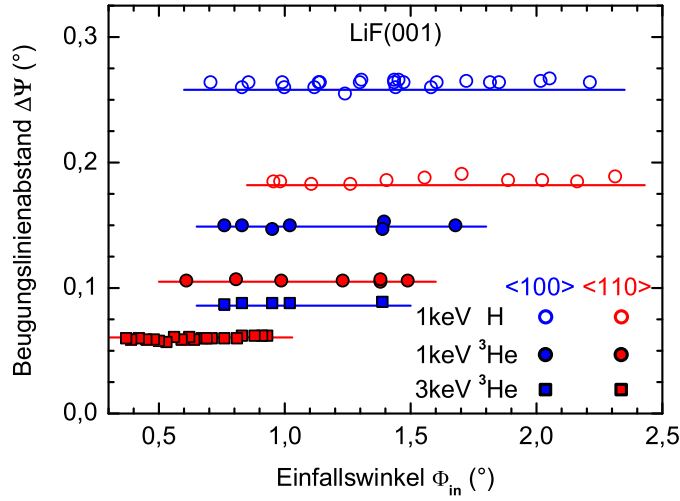


Abb. 5.5: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion des Einfallswinkels Φ_{in} für H-Atome (offene Symbole) und ^3He -Atome (volle Symbole) mit Projektilenergie von $E_0 = 1,00$ keV (Kreise) und $3,00$ keV (Quadrate) entlang einer $\langle 100 \rangle$ - (blaue Symbole) und einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (rote Symbole). Die konstanten Geraden repräsentieren die theoretischen Werte nach Gl. (5.2).

Winkelpositionen Ψ_n der Maxima der Gauß-Kurven sind in Abb. 5.4b als Funktion der Beugungsordnung n zusammen mit der besten Anpassung einer linearen Funktion dargestellt. Es zeigt sich innerhalb der Messgenauigkeit keine Abweichung von einer linearen Abhängigkeit. Da $\Psi < 1^\circ$ kann in Gl. (2.63) $\sin \Psi \approx \Psi$ genähert werden, daher hängt Ψ_n linear von n ab

$$\Psi_n = n \frac{\lambda_{dB}}{d} \quad (5.1)$$

Der mittlere Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ entspricht somit dem Anstieg der Regressionsgeraden in Abb. 5.4b. Bei gegebener Breite des Gitterführungschanals d ist er allein von λ_{dB} abhängig

$$\Delta\Psi = \frac{1}{d} \lambda_{dB} = \frac{h}{d \sqrt{2ME_0}} = s \lambda_{dB} \quad (5.2)$$

und damit unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} .

In Abb. 5.5 ist der experimentell bestimmte Wert $\Delta\Psi$ für verschiedene Projektile, Gitterführungsrichtungen und Projektilenergien bei jeweils gleicher De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} als Funktion des Einfallswinkels Φ_{in} aufgetragen (Symbole). Es zeigt sich jeweils ein konstanter Verlauf auf Höhe des durch Gl. (5.2) gegebenen theoretischen Wertes (Geraden).

Durch Messung von $\Delta\Psi$ als Funktion von λ_{dB} kann die Breite des Gitterführungschanals d aus dem linearen Anstieg s nach Gl. (5.2) be-

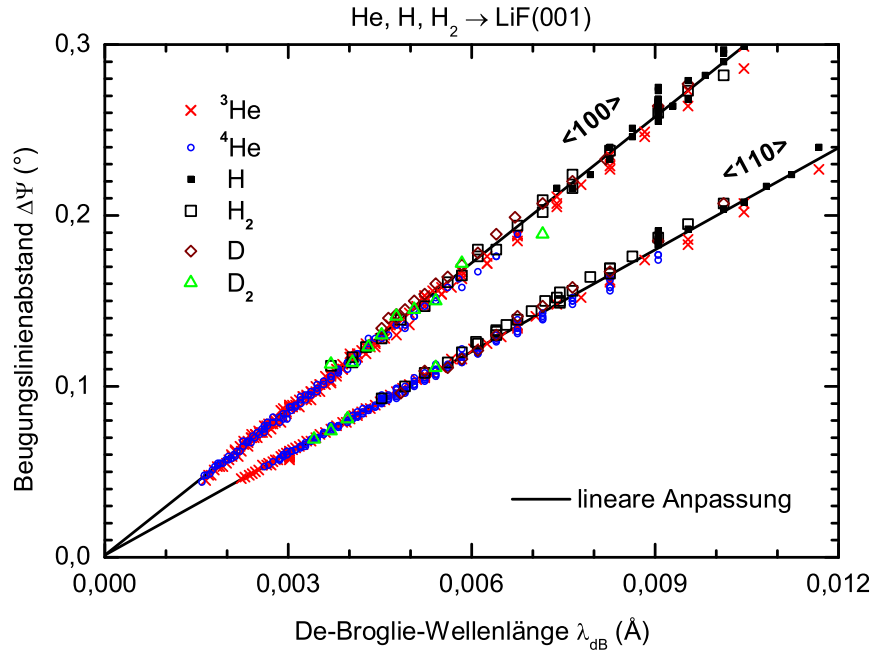


Abb. 5.6: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} für Streuung von ^3He - (rote Kreuze), ^4He - (blaue Kreise), H- (volle Quadrate) und D-Atomen (Rauten) sowie H_2 - (offene Quadrate) und D_2 -Molekülen (Dreiecke) an LiF(001) entlang $\langle 100 \rangle$ - (obere Symbole) und $\langle 110 \rangle$ -Richtung (untere Symbole). Die schwarzen Geraden repräsentieren jeweils die beste Anpassung einer linearen Funktion.

stimmt werden. Dabei kann die unterschiedliche Masse der Projektile ausgenutzt werden, da diesen bei gleicher Projektilenergie E_0 unterschiedliche De-Broglie-Wellenlängen zugeordnet sind. Dadurch kann in dem begrenzten Energiebereich, in dem die Kohärenz für Beugung ausreicht, ein größeres Intervall von λ_{dB} vermessen werden als mit einer Projektilesorte allein. In Abb. 5.6 sind die Ergebnisse der Bestimmung von $\Delta\Psi$ für Streuung von ^3He -, ^4He -, H- und D-Atomen sowie H_2 - und D_2 -Molekülen an LiF(001) mit verschiedenen Projektilenergien E_0 entlang $\langle 100 \rangle$ - (obere Symbole) und $\langle 110 \rangle$ -Richtung (unteren Symbole) als Funktion von λ_{dB} dargestellt. Jeder einzelne Datenpunkt entspricht einem aufgenommenen Beugungsmuster wie in Abb. 5.3 und dem daraus bestimmten $\Delta\Psi$ nach der in Abb. 5.4 gezeigten Methode. Die erreichbare De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} wird z.B. für ^4He nach oben hin durch die vom Aufbau bedingte Projektilenergie von $E_0 > 0,4 \text{ keV}$ begrenzt. Mit den leichteren H-Atomen hingegen können auch größere λ_{dB} erreicht werden, ohne an diese Grenze zu stoßen. Andererseits geht das Beugungsmuster bei Streuung von H-Atomen mit steigendem E_0 in eine klassische Verteilung über, wo keine Beugungslinien mehr

erkennbar sind, sodass die Bestimmung von $\Delta\Psi$ bei kleinen λ_{dB} mit H-Atomen nicht möglich ist. Der Übergang von Beugung zu klassischer Streuung wird in Abschn. 5.1.3 noch ausführlich behandelt. Das Auflösungsvermögen des MCP-Detektors und die durch die Divergenz des einlaufenden Atomstrahls bestimmte endliche Breite der Beugungslinien begrenzen deren Trennbarkeit auf $\Delta\Psi > 0,05^\circ$.

Die Datenpunkte der Moleküle in Abb. 5.6 fallen für die jeweilige Richtung mit den Datenpunkten der Atome zusammen. Dies zeigt, dass die Moleküle auf der einlaufenden Trajektorie intakt bleiben. Würde das H_2 -Molekül z.B. bei der Neutralisation im Gas-Target zerfallen, hätten die beiden entstandenen H-Atom-Fragmente immer noch die gleiche Geschwindigkeit v wie zuvor, aber nur noch jeweils die halbe Masse M wie H_2 und damit nach Gl. (2.33) die doppelte De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} . Dass der beobachtete Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ zur Masse von H_2 passt, beweist also, dass ein ausreichend großer Teil der Moleküle intakt bleibt.

Die schwarzen Geraden in Abb. 5.6 repräsentieren jeweils die beste Anpassung einer linearen Funktion an die Datenpunkte, mit der Nebenbedingung $\Delta\Psi(\lambda_{\text{dB}} = 0) = 0$. Aus dem Anstieg s dieser Geraden lässt sich nach Gl. (5.2) die Breite des jeweiligen Gitterführungschanals zu $d = 180^\circ/s\pi$ bestimmen. Die Ergebnisse werden in Tab. 5.1 zusammengefasst und mit den theoretischen Abständen d symmetrisch äquivalenter Punkte der LiF(001)-Oberfläche verglichen. Letztere entsprechen dem Abstand benachbarter Atom-Ketten gleicher Sorte. Für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung ist dies der Abstand von der F^- - zur nächsten F^- -Kette und nicht etwa von F^- - zur Li^+ -Kette (Abb. 5.1). Die Übereinstimmung zwischen den experimentell bestimmten und den theoretischen Werten zeigt, dass die Atom-Ketten der Oberfläche wie ein Beugungsgitter wirken.

Die sich aus der Streuung um die Regressionsgerade ergebende statistische Unsicherheit ist um mehr als eine Größenordnung kleiner als die systematische Unsicherheit, die sich aus der begrenzten Genauigkeit des MCP-Detektors bezüglich des azimuthalen Winkels Ψ ergibt (sie-

Tab. 5.1: Anstieg s der Regressionsgeraden aus Abb. 5.6 für Streuung an LiF(001) entlang $\langle 110 \rangle$ - und $\langle 100 \rangle$ -Richtung, Breiten der Gitterführungschanäle $d_{\text{exp}} = 180^\circ/s\pi$ und theoretische Breiten d_{cal} . In der letzten Spalte ist das Verhältnis vom gemessenen Wert zum theoretischen angegeben.

LiF(001)	s ($^\circ/\text{\AA}$)	d_{exp} (\AA)	d_{cal} (\AA)	$d_{\text{exp}}/d_{\text{cal}}$
$\langle 110 \rangle$	$20,1 \pm 0,7$	$2,85 \pm 0,10$	$g/\sqrt{2} = 2,847$	$1,00 \pm 0,03$
$\langle 100 \rangle$	$28,7 \pm 0,9$	$2,00 \pm 0,06$	$g/2 = 2,013$	$0,99 \pm 0,03$

he S. 82). Die Genauigkeit könnte gesteigert werden, wenn der MCP-Detektor bezüglich des direkten Strahls auch horizontal sowie vertikal über den gesamten empfindlichen Bereich definiert zu verschieben wäre, um eine genauere Ortseichung durchführen zu können.

Im Gegensatz zur Streuung von neutralen Atomen werden mit Ionen keine Beugungslinien beobachtet. Edelgas-Ionen wie He^+ neutralisieren vor der Oberfläche, bevor sie den Umkehrpunkt erreichen. Sie unterliegen bis zu ihrer Neutralisation der Bildladungswechselwirkung. Da der Ort der Neutralisation durch einen statistischen Prozess bestimmt wird, werden sich zwei Trajektorien auch dann unterscheiden, wenn sie – wie A und A^* in Abb. 2.21 – symmetrisch äquivalente Stoßparameter haben. So kommt es zu einer zufälligen Phasenverschiebung entlang der verschiedenen möglichen klassischen Wege eines Projektils zum selben Ort. Der Ladungsaustausch ist daher ebenso ein Dekohärenzprozess wie die thermischen Auslenkungen der Atome der Oberfläche (siehe Abschn. 2.3.3.3). Zusätzlich werden bei der Streuung von Ionen an $\text{LiF}(001)$ optische Phononen angeregt, was zu einem Energieverlust der Projektile führt [270] und damit ebenfalls zur Dekohärenz beiträgt. Die Anregung von Phononen, welche bei der Beugung thermischer Atome entscheidend zur Dämpfung der Interferenzeffekte beitragen können [176, 271], tritt bei der streifenden Streuung von neutralen Edelgas-Atomen an $\text{LiF}(001)$ nicht auf [62]. Jedoch erhöht sich bei der streifenden Streuung durch die schnelle Bewegung der Projektile parallel zur Oberfläche die Wahrscheinlichkeit, die Oberfläche elektronisch anzuregen [258, 272]. Diese Anregungen sind eine weitere Quelle von Dekohärenz während des Streuprozesses. Sie werden im folgenden Abschnitt ausführlich diskutiert.

Zusammenfassung: Die beobachteten Maxima in den Intensitätsverteilungen bei der Streuung von leichten neutralen Atomen und Molekülen sind eindeutig auf Quanteneffekte zurückzuführen. Die Beugungsmuster werden durch kohärente Streuung der Projektile an den Atomketten der Kristall-Oberfläche hervorgerufen, die wie ein Beugungsgitter wirken. Der Abstand der Beugungslinien ist äquidistant und unabhängig vom Einfallswinkel. Die azimuthalen Austrittswinkel der Beugungsstrahlen sind linear von der De-Broglie-Wellenlänge abhängig und entsprechen den von der Bragg-Bedingung geforderten Werten.

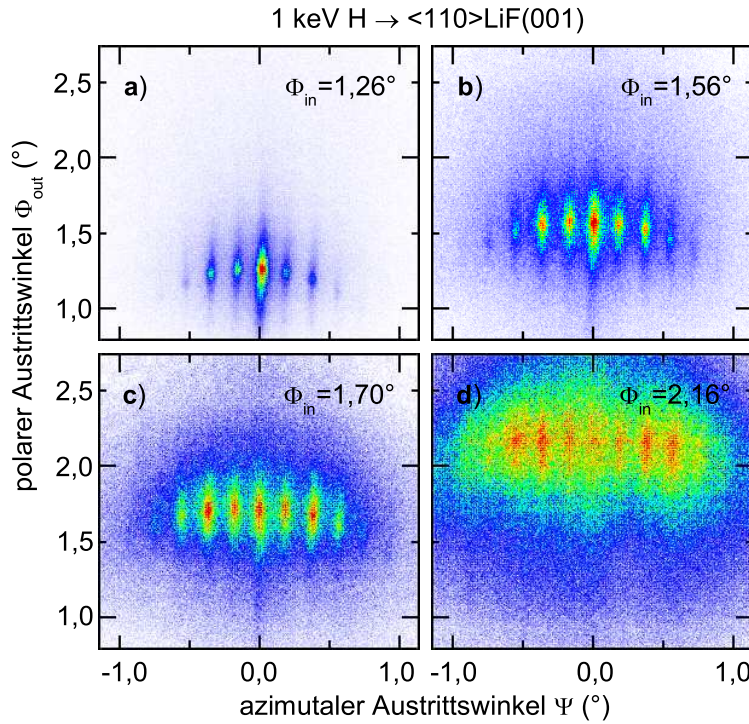


Abb. 5.7: Übergang von Beugung zu klassischer Streuung mit Erhöhung des Einfallswinkels Φ_{in} bei Streuung von H-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit konstanter Projektilenergie $E_0 = 1,00$ keV unter a) $\Phi_{\text{in}} = 1,26^\circ$, b) $1,56^\circ$, c) $1,70^\circ$ und d) $2,16^\circ$.

5.1.3 Übergang von Beugung zu klassischer Streuung

Ob in den Streuverteilungen diskrete Beugungslinien erkennbar sind oder ob sich eine klassische Intensitätsverteilung wie in Abb. 5.2a ergibt, wird nicht nur durch die De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} und vom räumlichen Auflösungsvermögen des Detektors bestimmt, sondern ist kritisch davon abhängig, ob unter den gegebenen Streuparametern Φ_{in} und E_0 an der jeweiligen Oberfläche kohärente Streuung möglich ist. In diesem Abschnitt wird untersucht, unter welchen Bedingungen Dekohärenzprozesse die Kohärenz zerstören.

In Abb. 5.7 werden die Intensitätsverteilungen für Streuung von H-Atomen bei konstanter Projektilenergie E_0 unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} gezeigt. Da der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ unabhängig von Φ_{in} ist (Abb. 5.5), kann hier das Anwachsen des inkohärenten (klassischen) Untergrunds zwischen den Beugungslinien gut beobachtet werden. Während bei $\Phi_{\text{in}} = 1,26^\circ$ nur wenig Intensität zwischen den einzelnen Bragg-Reflexen erscheint, sind bei $\Phi_{\text{in}} = 2,16^\circ$ die Reflexe kaum noch vom Untergrund zu unterscheiden. Weil der Strahl während der

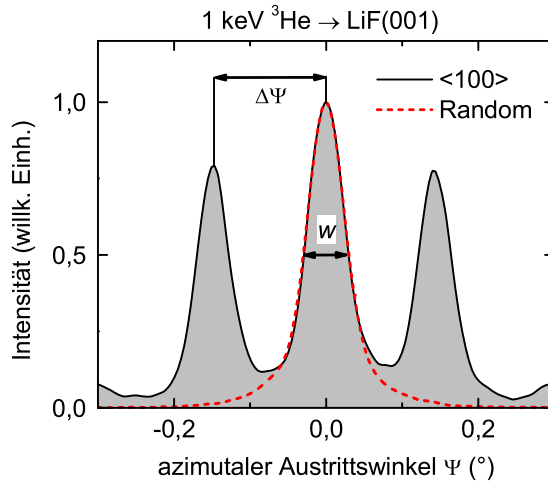


Abb. 5.8: Vergleich der Profile der projizierten Intensität der Beugungslinien $n=0$ als Funktion des azimutalen Austrittswinkels Ψ für Streuung von ^3He -Atomen mit $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (schwarze Kurve) und einer Random-Richtung (rot gestrichelte Kurve). Die azimutale Halbwertsbreite w und der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ sind markiert.

Messung nicht geändert wurde, die Breite der Energieverteilung der Projektile also konstant ist, können die Unterschiede im inkohärenten Untergrund nur vom Streuprozess stammen. Die gleichfalls zu beobachtende Änderung der relativen Intensität der Bragg-Reflexe wird in den Abschnitten 5.1.4 bis 5.1.9 genauer studiert.

Allgemein lässt sich keine genaue Grenze zwischen der Quanten- und der klassischen Welt definieren [173]. Für die Untersuchung des Übergangs von Braggscher Beugung zu klassischer Streuung bietet sich aber folgendes Kriterium an: Die auf Ψ projizierten Beugungslinien einer Verteilung haben zwar unterschiedliche Höhen, aber das gleiche Profil. Dabei steigt die azimutale Breite der einzelnen Beugungslinien mit Φ_{in} und E_0 . Ist die azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien kleiner als der Abstand $\Delta\Psi$ benachbarter Beugungslinien, dann sind diese deutlich getrennt, so wie in Abb. 5.8. Dieser Bereich wird hier als „von Beugung dominiert“ definiert. Übersteigt w aber $\Delta\Psi$, dann wird die Höhe der Intensität an der Position eines Reflexes wesentlich durch die Ausläufer der benachbarten Reflexe bestimmt. Dieser Fall wird hier als „überwiegend klassische Streuung“ definiert. Die azimutale Breite der Bragg-Reflexe ist dabei unabhängig von der Gitterführungsrichtung. Dies schließt die beliebig hoch indizierten Richtungen („Random“) mit ein, bei denen nur die Beugungsordnung $n=0$ auftritt. In Abb. 5.8 wird das Profil der Beugungsordnung $n=0$ für Streuung von ^3He -Atomen entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit dem Profil bei Streuung entlang einer Random-Richtung unter selben Bedingungen ($E_0 = 1,00 \text{ keV}$, $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$) verglichen. Die azimutalen Halbwertsbreiten w stimmen überein.

Die minimale azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien wird durch die azimutale Divergenz des einlaufenden (direkten) Strahls be-

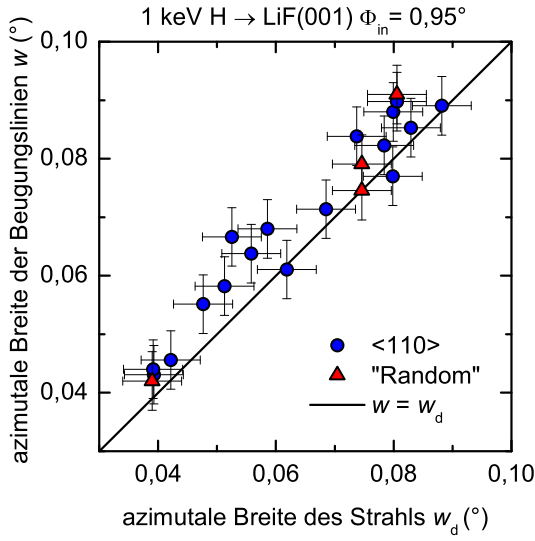


Abb. 5.9: Azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien für Streuung von H-Atomen an LiF(001) mit $\Phi_{\text{in}} = 0,95^\circ$ und $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ bei Streuung entlang $\langle 110 \rangle$ (blaue Kreise) und entlang einer Random-Richtung (rote Dreiecke) für $n=0$ als Funktion der Halbwertsbreite des direkten Strahls w_d in Bezug auf die Position des Targets. Die Gerade markiert die Koordinaten, bei denen $w = w_d$ ist.

stimmt. Mit den beiden standardmäßigen Paaren von Blenden (② und ④ in Abb. 3.2) mit 0,2 mm Spaltbreite ergibt sich eine Strahldivergenz von $0,03^\circ$ ausgehend vom Knotenpunkt des Strahls zwischen den beiden Blenden. Bei idealer Spiegelreflexion am Target ergibt sich damit am Detektor eine Breite von $0,059^\circ$ bezüglich der Position des Targets. Das Auflösungsvermögen des Detektors ist mit $\Delta\Psi \approx 0,01^\circ$ höher. Für eine bessere azimutale Kollimation kann der Atomstrahl mittels der vertikalen Blende des mittleren Blendenpaares ③ geometrisch weiter eingeeengt werden. Dadurch werden auch die Beugungslinien schmäler. In Abb. 5.9 ist die azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien für Streuung von H-Atomen an LiF(001) mit $\Phi_{\text{in}} = 0,95^\circ$ und $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ als Funktion der Halbwertsbreite w_d des direkten Strahls in Bezug auf die Position des Targets dargestellt². Die Gerade markiert die Koordinaten, bei denen $w = w_d$ ist. Die Datenpunkte folgen dem Anstieg dieser Geraden³. Dies ist unabhängig von der Ordnung n und der Gitterführungsrichtung, was $n=0$ bei Streuung entlang einer Random-Richtung einschließt (rote Dreiecke). Für eine von Beugung dominierte Intensitätsverteilung muss der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ also immer größer als die Breite des Strahls w_d sein, d.h. bei Standardblenden $\Delta\Psi > 0,059^\circ$.

Bei Verwendung der breiten vertikalen Blenden statt der Standardblenden wird aus einem Beugungsmuster eine klassische Intensitätsverteilung. In Abb. 5.10a ist ein Beugungsmuster bei der Streuung von ^4He -Atomen mit $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ an LiF(001) unter $\Phi_{\text{in}} = 0,99^\circ$ entlang ei-

²Für diese Bedingungen ist die Streuung von Beugung dominiert (Abb. 5.11).

³Um eine azimutale Breite $w_d > 0,059^\circ$ einzustellen, wurden die breiten vertikalen Blenden verwendet.

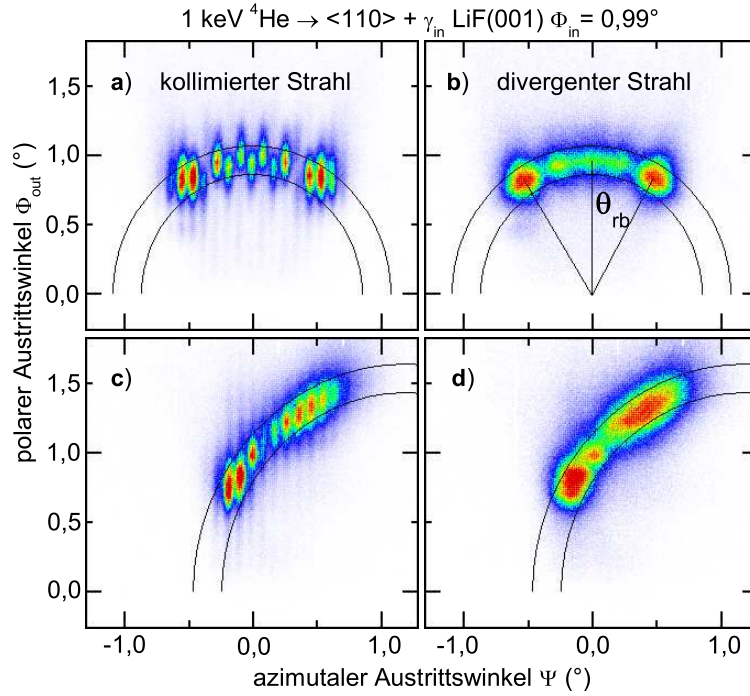


Abb. 5.10: Beugungsmuster bei kollimiertem Strahl (links) und klassische Intensitätsverteilung bei divergentem Strahl (rechts) für Streuung von ^4He -Atomen mit $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ an $\text{LiF}(001)$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0,99^\circ$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (oben) und bei azimuthaler Verdrehung von $\gamma_{\text{in}} \approx 1,3^\circ$ bezüglich der $\langle 110 \rangle$ -Richtung (unten). Der Kreisring markiert jeweils die Positionen elastisch gestreuter Projektile.

ner $\langle 110 \rangle$ -Richtung dargestellt, so wie es bei einem unter Verwendung der Standardblenden kollimierten Strahl mit dem MCP-Detektor aufgenommen wurde. Für Abb. 5.10b hingegen wurden breitere vertikale Blenden unter sonst gleichen Bedingungen verwendet. Die azimuthale Divergenz des Strahls ist hier größer als der Beugungslinienabstand, die Intensitätsverteilung entspricht daher einer klassischen Verteilung mit den charakteristischen Maxima beim Regenbogenwinkel $\pm\theta_{\text{rb}}$. In Abb. 5.10c bzw. d sind die Intensitätsverteilungen bei kollimiertem und divergentem Strahl unter gleichen Bedingungen wie in Abb. 5.10a bzw. b, jedoch bei einer azimuthalen Verdrehung des Strahls bezüglich der $\langle 110 \rangle$ -Richtung von $\gamma_{\text{in}} \approx 1,3^\circ$, gegenübergestellt. Die Beugungsmuster bei azimuthaler Verdrehung werden in Abschn. 5.1.9 noch ausführlich behandelt. Die klassische Verteilung in Abb. 5.10d entspricht einer Verschmierung des Beugungsmusters in Abb. 5.10c bezüglich des azimuthalen Austrittswinkels Ψ . Eine Verschmierung bezüglich des polaren Austrittswinkels Φ_{out} kann die Auflösung der Beugungslinien hingegen nicht verringern. Dementsprechend bewirkt die Änderung der po-

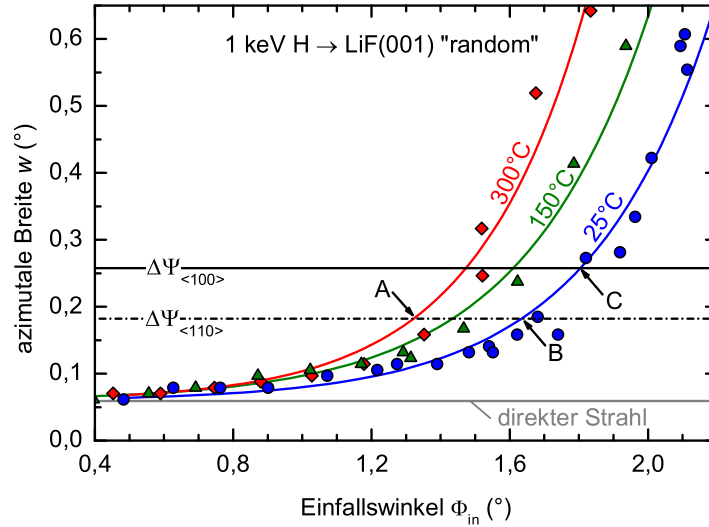


Abb. 5.11: Azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien als Funktion des Einfallswinkels Φ_{in} für Streuung von H-Atomen an LiF(001) mit $E_0 = 1,00$ keV Projektilenergie entlang einer Random-Richtung bei Target-Temperaturen von $T = 25^\circ\text{C}$, 150°C und 300°C . Die Kurven sollen das Auge führen. Zusätzlich ist die Breite des einfallenden direkten Strahls (graue Gerade) und der Abstand benachbarter Beugungslinien $\Delta\Psi_{\langle 110 \rangle}$ sowie $\Delta\Psi_{\langle 100 \rangle}$ für Beugung an den $\langle 110 \rangle$ - bzw. den $\langle 100 \rangle$ -Atomketten der LiF(001)-Oberfläche gegeben. Die Punkte A, B und C markieren die jeweils im Text diskutierten Grenzen zwischen Beugung und überwiegend klassischer Streuung.

laren Divergenz des Strahls mittels der horizontalen Blenden kaum eine Änderung des Beugungsmusters und insbesondere keine Änderung der azimutalen Halbwertsbreite w der Beugungslinien.

Im Folgenden wird nun die Verbreiterung der Beugungslinien durch die Wechselwirkung mit der Oberfläche betrachtet. Da das Profil der Beugungslinien unabhängig von deren Ordnung und der Gitterführungsrichtung ist, wurde dessen Abhängigkeit von Φ_{in} , E_0 , Target-Temperatur und Projektilsorte bei Streuung entlang einer Random-Richtung untersucht. Hier ist die Intensität für $n \neq 0$ faktisch Null. So kann die Intensität des Bragg-Reflexes $n = 0$ nicht von den Ausläufern der benachbarten Reflexe beeinflusst werden (vergl. Abb. 5.8).

In Abb. 5.11 wird die azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien bei Streuung von H-Atomen an LiF(001) mit $E_0 = 1,00$ keV als Funktion von Φ_{in} für verschiedene Temperaturen T des LiF-Kristalls dargestellt und mit dem theoretischen Beugungslinienabstand $\Delta\Psi_{\langle 110 \rangle}$ und $\Delta\Psi_{\langle 100 \rangle}$ bei Streuung entlang $\langle 110 \rangle$ - bzw. $\langle 100 \rangle$ -Richtung verglichen. Für kleine Φ_{in} sind die Beugungslinien kaum breiter als der einfallende direkte Strahl. Mit steigendem Φ_{in} steigt die Breite aber ex-

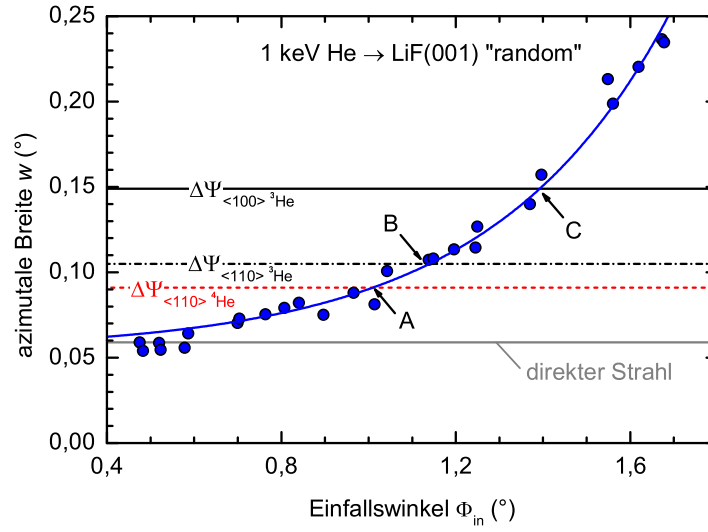


Abb. 5.12: Azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien als Funktion des Einfallswinkels Φ_{in} für Streuung von He-Atomen an LiF(001) mit $E_0 = 1,00$ keV entlang einer Random-Richtung. Die blaue Kurve soll das Auge führen. Zusätzlich ist die Breite des einfallenden direkten Strahls (graue Gerade) und der Abstand benachbarter Beugungslinien $\Delta\Psi_{\langle 110 \rangle^4He}$, $\Delta\Psi_{\langle 110 \rangle^3He}$ und $\Delta\Psi_{\langle 100 \rangle^3He}$ für Beugung von 3He - bzw. 4He -Atomen an den $\langle 110 \rangle$ - bzw. den $\langle 100 \rangle$ -Atomketten der LiF(001)-Oberfläche gegeben. Die Punkte A, B und C markieren die jeweilige Grenze zwischen Beugung und überwiegend klassischer Streuung.

ponentiell an. Für $T = 300^\circ\text{C}$ ist die Intensitätsverteilung für Streuung entlang $\langle 110 \rangle$ bereits am Punkt A bei $\Phi_{in} \approx 1,3^\circ$ überwiegend klassisch, während bei $T = 25^\circ\text{C}$ die Verteilung erst am Punkt B bei $\Phi_{in} \approx 1,6^\circ$ von einer von Beugung dominierten zu einer überwiegend klassischen Streuverteilung übergeht. Die zu diesem kritischen Einfallswinkel korrespondierende Intensitätsverteilung ist in Abb. 5.7b gezeigt. Zwar gibt es im Vergleich zu Abb. 5.7a deutlich mehr Intensität zwischen den Reflexen, doch sind sie noch deutlich getrennt. Natürlich sind auch bei etwas größerem Einfallswinkel wie in Abb. 5.7c die Beugungslinien noch zu erkennen, mehr als die Hälfte der gesamten Intensität kann hier aber bereits zum klassischen Untergrund gezählt werden. Aufgrund der geringeren Breite d des $\langle 100 \rangle$ -Kanals und des daraus resultierenden größeren Beugungslinienabstandes gegenüber $\langle 110 \rangle$ geht die Streuverteilung bei $T = 25^\circ\text{C}$ für diese Richtung erst am Punkt C bei $\Phi_{in} \approx 1,8^\circ$ in eine überwiegend klassische Verteilung über.

Bei der Streuung von He-Atomen mit $E_0 = 1,00$ keV zeigt sich ein ähnliches Bild, jedoch ist $\Delta\Psi$ für He kleiner als für H. In Abb. 5.12 ist die Halbwertsbreite w für Streuung von 1 keV He entlang einer Random-Richtung als Funktion von Φ_{in} dargestellt. Für Streuung von

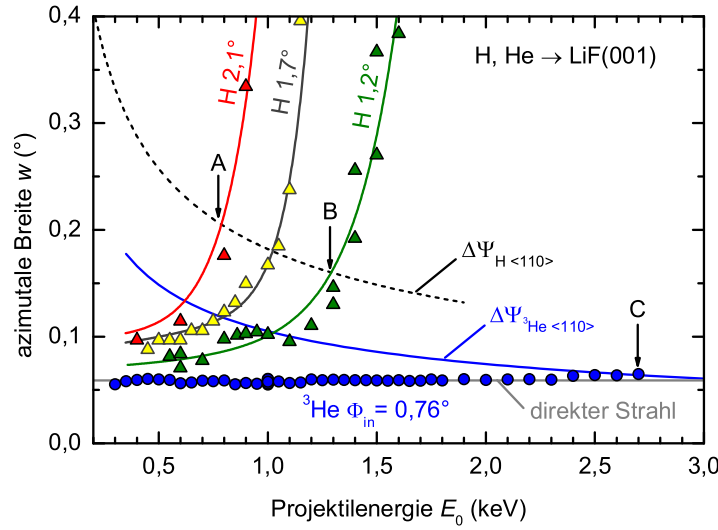


Abb. 5.13: Azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien als Funktion der Projektilenergie E_0 bei Streuung von H-Atomen (Dreiecke) unter $\Phi_{\text{in}} = 2,1^\circ$, $1,7^\circ$ und $1,2^\circ$ (die Kurven sollen das Auge führen) sowie von He-Atomen (Kreise) unter $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ an LiF(001) entlang einer Random-Richtung. Zusätzlich ist die Breite des einfallenden direkten Strahls (graue Gerade) und der Abstand benachbarter Beugungslinien $\Delta\Psi_{\text{H}\langle 110 \rangle}$ und $\Delta\Psi_{\text{He}\langle 110 \rangle}$ für Beugung von ^3He - bzw. H-Atomen an den $\langle 110 \rangle$ -Ketten der LiF(001)-Oberfläche gegeben. Die Punkte A, B und C markieren die jeweilige Grenze zwischen Beugung und überwiegend klassischer Streuung.

^4He -Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung geht die Verteilung bereits am Punkt A bei $\Phi_{\text{in}} \approx 1,0^\circ$ in eine überwiegend klassische Verteilung über, für ^3He ist dies erst bei größerem Φ_{in} am Punkt B der Fall. Für den schmaleren $\langle 100 \rangle$ -Kanal vollzieht sich der Übergang erst am Punkt C bei $\Phi_{\text{in}} \approx 1,4^\circ$. Die Verbreiterung mit Φ_{in} kann mit einem steigenden Anteil eines breiteren inkohärenten Untergrunds durch den Einfluss thermisch ausgelenkter Atome der Oberfläche erklärt werden [27, 28]. Das Verhältnis von kohärenter Intensität zur Gesamtintensität wird durch den modifizierten Debye-Waller-Faktor f_{mDW} aus Gl. (2.46) beschrieben. Während z.B. für Streuung von He mit $E_0 = 200 \text{ eV}$ an LiF(001) bei $\Phi_{\text{in}} < 1^\circ$ $f_{\text{mDW}} > 0,8$ beträgt, ist bei $\Phi_{\text{in}} > 1,6^\circ$ $f_{\text{mDW}} < 0,5$ (siehe Fig. 7 in Ref. [27]). Bei großem Φ_{in} gehört also mehr als die Hälfte der Gesamtintensität zum breiteren klassischen Untergrund, der damit die azimutale Halbwertsbreite w dominiert, während bei kleinem Φ_{in} mehr als 80% kohärent gebeugt werden, wobei der breitere inkohärente Fuß der Verteilung die Halbwertsbreite kaum vergrößert.

Erhöht man statt des Einfallswinkels die Projektilenergie E_0 , dann verringert sich $\Delta\Psi$, sodass – selbst wenn w konstant bleiben würde – die Intensitätsverteilung ab einem bestimmten E_0 in eine klassische Streu-

verteilung übergeht. Die blauen Punkte in Abb. 5.13 repräsentieren die Halbwertsbreite w der Beugungslinien bei Streuung von ^3He -Atomen und die blaue Kurve den Beugungslinienabstand $\Delta\Psi(E_0)$ für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung nach Gl. (5.2). Für $E_0 = 1 \text{ keV}$ liegt $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ unterhalb des kritischen Winkels des Übergangs zur klassischen Streuung (Abb. 5.12). Die Breite w bleibt im untersuchten Bereich von E_0 näherungsweise konstant auf dem Niveau, wie es allein durch die Divergenz des einfallenden Strahls bestimmt wird. Ab dem Punkt C in Abb. 5.13 bei $E_0 \approx 2,7 \text{ keV}$ ist $\Delta\Psi < w$ und die Verteilung überwiegend klassisch. Im Gegensatz dazu steigt die Breite w bei Streuung von H-Atomen stark an, wenn E_0 erhöht wird. Für $\Phi_{\text{in}} = 2,1^\circ$ geht die Verteilung bereits am Punkt A bei $E_0 \approx 0,8 \text{ keV}$ in eine überwiegend klassische über. Für einen kleineren Einfallswinkel wie $\Phi_{\text{in}} = 1,2^\circ$ findet der Übergang zwar erst bei höherem E_0 am Punkt B statt, der exponentielle Verlauf $w(E_0)$ bleibt aber ähnlich.

Das unterschiedliche Verhalten bei der Streuung von He- und H-Atomen lässt sich mit dem Dekohärenzprozess, der durch die thermisch ausgelenkten Atome der Oberfläche induziert wird (Abschn. 2.3.3.3), nicht erklären. Der Debye-Waller-Faktor Gl. (2.41) ist nach Gl. (2.45) für Projektilen mit höherer Masse M_P kleiner, d.h. der inkohärente Untergrund sollte bei Streuung von He-Atomen höher sein als bei H-Atomen. Eine mögliche Ursache könnten Dekohärenzprozesse aufgrund des Energieverlusts bei Anregungen von Elektronen und Exzitonen spielen, welche bei der Streuung von H-Atomen an LiF(001) ab einer bestimmten Schwellenenergie bzw. Geschwindigkeit auftreten können [61, 257–259, 273], während sie bei Edelgas-Atomen unterdrückt sind [62, 259]. Selbst bei sehr großem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 1,8^\circ$ liegt die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron oder Exziton mit 1 keV He anzuregen, noch unter 1% (Abb. 6.15 in Ref. [259]), während bei gleichen Bedingungen mit H-Atomen schon über 80% der Projektilen ein Elektron oder Exziton anregen [274]. Gestützt wird diese These durch die folgende Analyse der Form des Profils der Beugungslinien.

Abb. 5.14 zeigt die projizierte Intensität der Beugungslinie $n=0$ als Funktion von Ψ für Streuung von H-Atomen mit $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ an LiF(001) entlang einer Random-Richtung für verschiedene Einfallswinkel Φ_{in} . Mit steigendem Φ_{in} wächst der breitere inkohärente Untergrund an, welcher die schmalere Beugungslinie überlagert. Das Profil der Verteilungen lässt sich gut mit einer „Pseudo-Voigt-Funktion“ [275, 276]

$$I(\Psi) = A \left(\mu \frac{2w_L}{\pi(4\Psi^2 + w_L^2)} + (1 - \mu) \frac{\sqrt{2\ln 4}}{w_G\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{2\ln 4}{w_G^2}\Psi^2\right) \right) \quad (5.3)$$

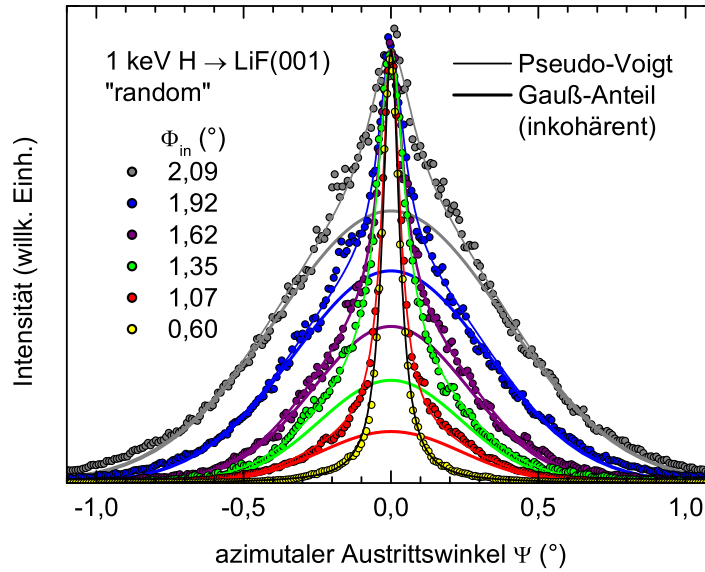


Abb. 5.14: Projizierte Intensität der Beugungslinie $n=0$ als Funktion von Ψ für Streuung von H-Atomen mit $E_0=1,00$ keV an LiF(001) entlang einer Random-Richtung für verschiedene Einfallswinkel Φ_{in} . Die dünnen Kurven repräsentieren die beste Anpassung einer Pseudo-Voigt-Funktion an die Daten, die dicken Kurven stellen den Anteil der Gauß-Funktion an der jeweiligen Pseudo-Voigt-Funktion dar, welcher als inkohärenter Untergrund interpretiert wird.

beschreiben, die als eine additive Überlagerung einer Lorentz-Funktion mit Halbwertsbreite w_L und einer Gauß-Kurve mit Halbwertsbreite w_G definiert ist, wobei μ den Anteil der Fläche der Lorentz-Kurve an der Gesamtfläche A angibt. Die dünnen Kurven in Abb. 5.14 zeigen die beste Anpassung von Pseudo-Voigt-Funktionen an die Daten. Die dicken Kurven entsprechen jeweils dem Anteil der Gauß-Funktion. Dieser wird als inkohärenter Untergrund interpretiert, da die inkohärenten azimutalen Verteilungen bei höheren Energien Gauß-förmig und deutlich breiter als der einfallende Atomstrahl sind. Der Anteil des inkohärenten Untergrunds an der Gesamtintensität A ist nach Gl. (5.3) dann $(1 - \mu)A$.

Der so bestimmte inkohärente Anteil für Streuung von H-Atomen mit $E_0=1,00$ keV an LiF(001) ist in Abb. 5.15 als Funktion von Φ_{in} dargestellt (graue Kreise). Jeder Datenpunkt entspricht der Anpassung einer Pseudo-Voigt-Funktion an eine Verteilung, so wie in Abb. 5.14 exemplarisch gezeigt. Der inkohärente Anteil ist mit dem Anteil der Projektile vergleichbar, die beim Streuprozess Elektronen oder Exzitonen anregen (orange Dreiecke). Die Wahrscheinlichkeit dieser elektronischen Anregungen wurde in einem separaten Experiment von Lederer [259, 274] durch Messung des Energieverlusts der H-Projektile mit-

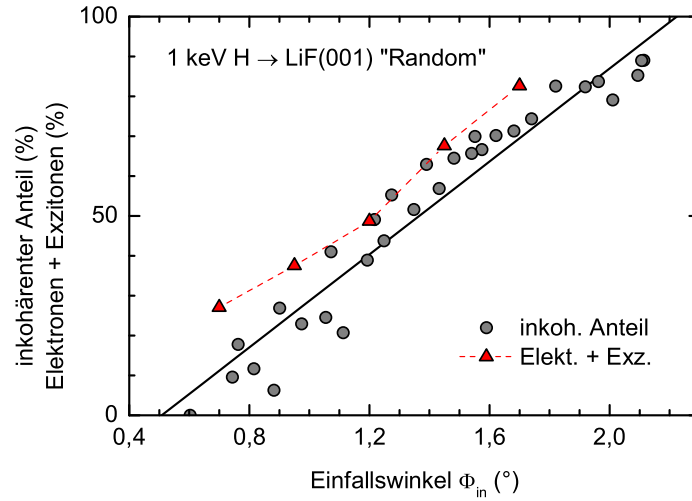


Abb. 5.15: Inkohärenter Anteil definiert als Anteil der Gauß-Funktion der besten Anpassung einer Pseudo-Voigt-Funktion an das Profil der Beugungslinie (Abb. 5.14) bei Streuung von H-Atomen mit $E_0 = 1$ keV an LiF(001) entlang einer Random-Richtung als Funktion des Einfallswinkels Φ_{in} . Die angepasste lineare Funktion (schwarze Gerade) soll das Auge führen. Zum Vergleich ist der Anteil der Projektile gegeben, die beim Streuprozess durch Anregung von Elektronen oder Exzitonen einen Energieverlust erleiden [274] (rote Dreiecke).

tels Flugzeit-Spektroskopie (TOF) bestimmt. Der Anteil der Projektile, die beim Streuprozess durch Anregung von Elektronen und Exzitonen Energie verlieren, stimmt also in etwa mit dem Anteil der Projektile überein, die zum breiten inkohärenten Untergrund beitragen.

Im Gegensatz zur Streuung von H-Atomen lassen sich die Profile der Beugungslinien bei Streuung von He-Atomen näherungsweise allein durch eine Lorentz-Funktion beschreiben. Die Wahrscheinlichkeit für elektronische Anregungen bei Streuung von Edelgas-Atomen an LiF(001) ist sehr gering [62, 259]. Dies stützt die Interpretation, dass der zusätzliche breite Gauß-förmige Untergrund, wie er bei H-Projektilen beobachtet wird, von Dekohärenzprozessen aufgrund elektronischer Anregungen stammt.

Eine ähnliche Übereinstimmung zwischen inkohärentem Anteil und der Wahrscheinlichkeit für elektronische Anregungen zeigt sich, wenn man die Daten als Funktion der Projektilenergie E_0 betrachtet. In Abb. 5.16 ist exemplarisch die projizierte Intensität der Beugungslinie $n = 0$ als Funktion von Ψ für Streuung von H-Atomen unter $\Phi_{\text{in}} = 1,7^\circ$ an LiF(001) entlang einer Random-Richtung für vier verschiedene E_0 dargestellt. Die dünnen und dicken Kurven repräsentieren wieder die jeweils beste Anpassung einer Pseudo-Voigt-Funktion bzw. deren inkohärenten Gauß-Anteil. Dieser ist in Abb. 5.17 als Funktion von E_0 dar-

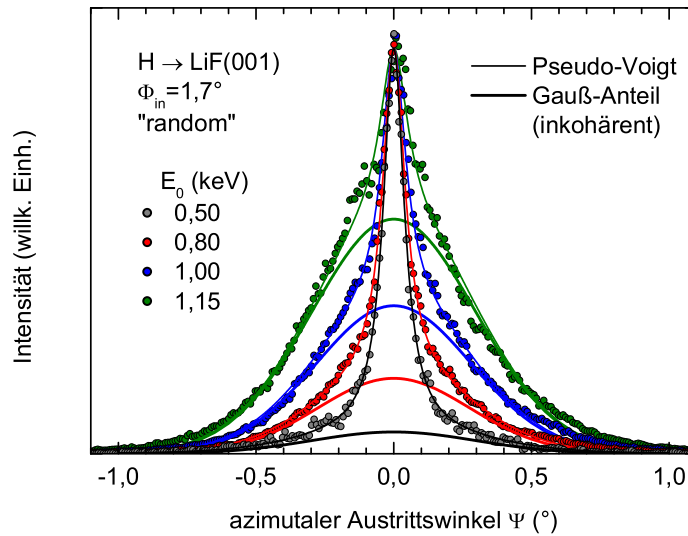


Abb. 5.16: Wie Abb. 5.14, jedoch für Streuung unter konstantem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 1,7^\circ$ für verschiedene Projektilenergien E_0 .

gestellt (blaue Rauten). Bei ähnlichem Einfallswinkel ($\Phi_{\text{in}} = 1,8^\circ$) zeigt die Wahrscheinlichkeit, dass ein Projektil während der Streuung einen Energieverlust durch elektronische Anregungen erleidet [258, 259, 274], eine ähnliche Abhängigkeit von E_0 (blaue Quadrate). Bei geringerem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 1,2^\circ(1,3^\circ)$ regen bei gleichem E_0 weniger Projektile Elektronen und Exzitonen an (rote Dreiecke). Daher werden auch weniger Projektile inkohärent gestreut (rote Kreise), sodass auch hier die beiden Kurven einen ähnlichen Verlauf zeigen.

Trotz dieses scheinbar eindeutigen Zusammenhangs und außer der Beobachtung, dass sich die Profile der Beugungslinien für H- und He-Atome unterscheiden, gibt es kein Modell, mit dem die Beschreibung der Profile durch eine Pseudo-Voigt-Funktion theoretisch begründet werden kann. Eine Superposition einer schmalen und einer breiten Gauß-Kurve könnte die Profile ähnlich gut beschreiben. Leider blieb eine diesbezügliche Zusammenarbeit mit Theoretikern der AG Burgdörfer von der TU Wien ohne nennenswerten Erfolg. Es gibt aber Argumente, die Beschreibung durch eine Pseudo-Voigt-Funktion zu favorisieren. Der Fuß des Profils der Beugungslinien bei Streuung von He-Atomen kann einem inkohärenten Untergrund zugeschrieben werden, der durch die thermisch ausgelenkten Atome der Oberfläche induziert wird [27, 28]. Dementsprechend kann auch die Fläche der Lorentz-Kurve der Pseudo-Voigt-Funktion als Summe des kohärenten Anteils und des inkohärenten Anteils, der nicht durch elektronische Anregung verursacht wird, interpretiert werden. Es ist daher richtig, die gesamte

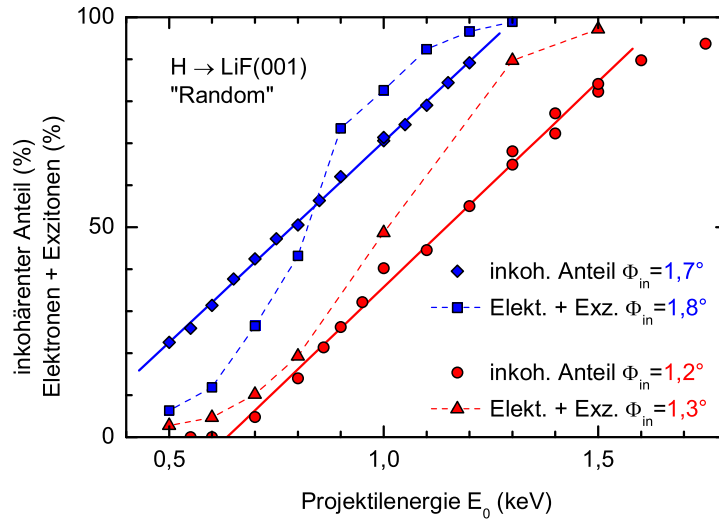


Abb. 5.17: Inkohärenter Anteil definiert als Anteil der Gauß-Funktion der besten Anpassung einer Pseudo-Voigt-Funktion an das Profil der Beugungslinien (Abb. 5.16) bei Streuung von H-Atomen an LiF(001) mit $\Phi_{\text{in}} = 1,7^\circ$ (blau) und $1,2^\circ$ (rot) entlang einer Random-Richtung als Funktion der Projektilenergie E_0 . Die angepassten linearen Funktionen (rote bzw. blaue Gerade) sollen das Auge führen. Die Wahrscheinlichkeiten für die Anregung von Elektronen oder Exzitonen während des Streuprozesses bei $\Phi_{\text{in}} = 1,8^\circ$ bzw. $\Phi_{\text{in}} = 1,3^\circ$ sind als Quadrate bzw. Dreiecke gegeben [258, 259, 274].

Fläche unter der Lorentz-Kurve nicht zu dem inkohärenten Untergrund zu zählen, der mit den Wahrscheinlichkeiten für elektronische Anregungen in (Abb. 5.15 und 5.17) verglichen wird. Für eine eindeutige Anpassung einer Superposition von drei Gauß-Kurven – eine für den inkohärenten Anteil aufgrund elektronischer Anregung, eine für den inkohärenten Anteil aufgrund der thermischen Auslenkungen und eine für den kohärenten Anteil – sind zusätzlich Annahmen über deren Breite nötig. Die beste Anpassung einer freien Pseudo-Voigt-Funktion aus einer schmalen Lorentz-Kurve und einer breiten Gauß-Kurve ist hingegen eindeutig zu finden, ohne willkürliche Annahmen über die Breiten des inkohärenten Untergrunds, wie sie scheinbar in Ref. [27, 29, 33] gemacht wurden.

Die azimuthalen Halbwertsbreiten w_L und w_G der besten Anpassung von Pseudo-Voigt-Funktionen an die Profile der Beugungslinien für Streuung von H-Atomen – wie in Abb. 5.14 und 5.16 – sind in Abb. 5.18 in einem gemeinsamen Diagramm als Funktion von E_\perp dargestellt. Zusammen mit dem korrespondierenden Wert für μ aus Abb. 5.15 und 5.17 lassen sich die Profile aller gemessenen Verteilungen jeweils aus diesen drei Parametern mit Gl. (5.3) reproduzieren. Die Breite des in-

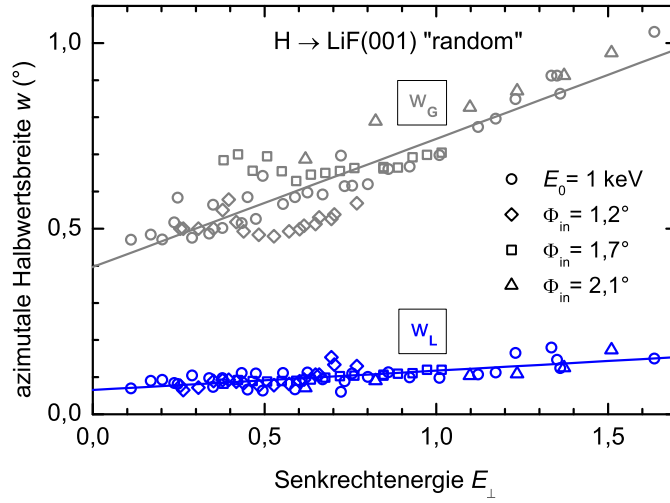


Abb. 5.18: Azimutale Halbwertsbreite w_L und w_G des Lorentz-Anteils (blau) bzw. des Gauß-Anteils (grau) der besten Anpassung einer Pseudo-Voigt-Funktion an das Profil der Beugungslinien für Streuung von H-Atomen an LiF(001) mit einer Projektilenergie $E_0 = 1$ keV unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} wie in Abb. 5.14 (Kreise) und für unterschiedliche E_0 wie in Abb. 5.16 bei $\Phi_{\text{in}} = 1,2^\circ$ (Rauten), $1,7^\circ$ (Quadrate) und $2,1^\circ$ (Dreiecke) als Funktion der Senkrechtenergie E_\perp . Die Geraden repräsentieren die beste lineare Anpassung.

kohärenten Untergrunds w_G ist ca. fünffach so groß wie die Breite des Beugungsreflexes w_L , der in keinem Fall deutlich breiter als der direkte Strahl ist ($w_d = 0,059^\circ$). Beide Werte steigen nur leicht, in grober Näherung linear mit E_\perp an. Die Beugungslinien bei Streuung von H-Atomen werden also nicht schlagartig breiter, wie es Abb. 5.13 vermuten lässt, sondern der Anteil des breiten inkohärenten Untergrunds $(1 - \mu)A$ steigt an, bis dieser die Halbwertsbreite des Profils der Beugungslinie dominiert.

Zusammenfassung: Die minimale azimutale Halbwertsbreite der Beugungslinien ist direkt proportional zur Divergenz des einfallenden Atomstrahls. Die Beugungslinien haben das gleiche Profil, unabhängig von deren Ordnung und der Gitterführungsrichtung. Die Breite der Beugungslinien steigt mit der Projektilenergie und dem Einfallswinkel. Ist der Abstand benachbarter Beugungslinien deutlich kleiner als deren Breite, dann ergibt sich eine klassische Streuverteilung. Bei Streuung von H-Atomen steigt die Wahrscheinlichkeit für einen Energieverlust des Projektils aufgrund elektronischer Anregungen mit Projektilenergie und Einfallswinkel wie der Anteil des breiten, inkohärenten Untergrunds jeder Beugungslinie. Die dominanten Dekohärenzmechanismen sind damit identifiziert.

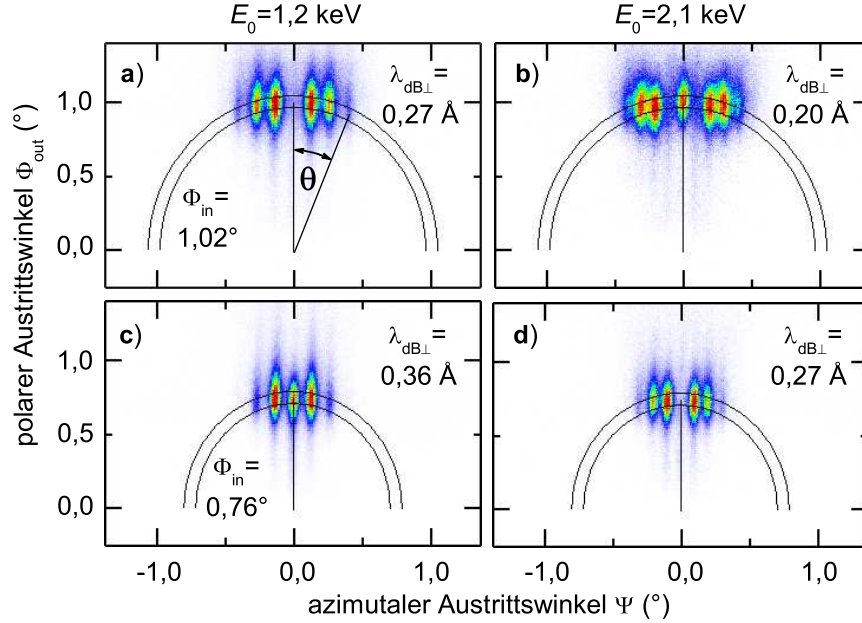
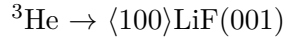


Abb. 5.19: Intensitätsverteilungen für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen mit $E_0 = 1,2 \text{ keV}$ (links) und $2,1 \text{ keV}$ (rechts) unter Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 1,02^\circ$ (oben) und $0,76^\circ$ (unten) an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Man beachte in a) und d) haben die ${}^3\text{He}$ -Projekte die gleiche Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB},\perp}$.

5.1.4 Intensität der Beugungsmaxima

Wie in Abb. 5.4a schon zu erkennen war, unterscheiden sich die relativen Intensitäten der Bragg-Reflexe. Die relative Intensität jedes Reflexes zeigt eine unterschiedlich von der Projektilenergie E_0 und vom Einfallswinkel Φ_{in} abhängende Oszillation. Dieser Effekt wird in diesem Abschnitt genauer betrachtet.

In Abb. 5.19 werden Intensitätsverteilungen für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung gezeigt. Während bei Streuung mit $E_0 = 1,2 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 1,02^\circ$ der Bragg-Reflex der Ordnung $n = 0$ bei $\Psi = 0$ keine Intensität aufweist, ist dieser sowohl bei höherer Projektilenergie $E_0 = 2,1 \text{ keV}$ als auch bei kleinerem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ unter sonst jeweils gleichen Bedingungen intensiv. Die Intensitäten innerhalb des jeweils eingezeichneten Kreistrings elastisch gestreuter Projektile aus Abb. 5.19a und b wurden auf die Achse des azimutalen Austrittswinkels Ψ projiziert und in Abb. 5.20a auf das höchste Maximum normiert gegenübergestellt. Wie schon anhand von Abb. 5.5 diskutiert, ist der Abstand der Beugungsmaxima $\Delta\Psi$ unabhängig von Φ_{in} , sodass bei konstanter Projektilenergie die

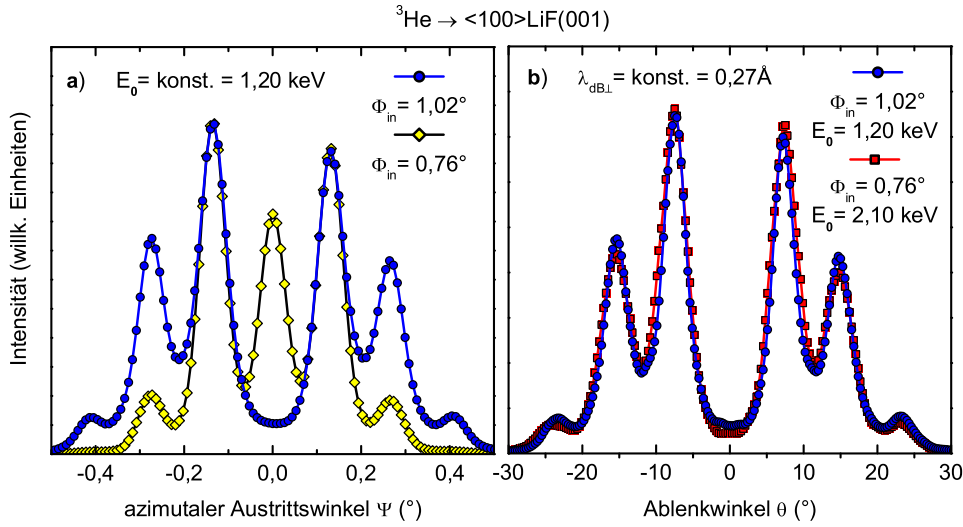


Abb. 5.20: **a)** Projektion der Intensität innerhalb des Kreisrings in Abb. 5.19a und c für Streuung unter Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 1,02^\circ$ (blaue Kreise) und $0,76^\circ$ (gelbe Rauten) bei gleicher Projektilenergie $E_0 = 1,20 \text{ keV}$ als Funktion des azimutalen Austrittswinkels Ψ . **b)** Projektion der Intensität innerhalb des Kreisrings in Abb. 5.19a und d für Streuung bei gleicher Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp} = 0,27 \text{ \AA}$ als Funktion des Ablenkwinkels θ .

Positionen der azimutalen Austrittswinkel Ψ_n der Beugungsmaxima gleicher Ordnung n für $\Phi_{\text{in}} = 1,02^\circ$ (blaue Kreise) und $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ (gelbe Rauten) übereinstimmen.

Andererseits unterscheiden sich die relativen Intensitäten der Maxima. Dies ist auf die unterschiedliche Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ zurückzuführen. Die Intensität der Bragg-Reflexe wird durch die Interferenz zwischen den jeweils beiden Trajektorien vom Typ *A* und *B* (siehe Abb. 2.21) mit gleichem Ablenkwinkel θ_n bestimmt, der gleichzeitig die Bragg-Bedingung erfüllt. Wird $\lambda_{\text{dB}\perp} = \lambda_{\text{dB}} / \sin \Phi_{\text{in}}$ über den Einfallswinkel Φ_{in} geändert, dann ändert sich auch die Phasenbeziehung zwischen *A* und *B* und damit die relative Intensität der Bragg-Reflexe. Zusätzlich unterscheiden sich auch die Trajektorien, da aufgrund der unterschiedlichen Senkrechtere Energie $E_\perp = E_0 \sin^2 \Phi_{\text{in}}$ die Streuung an verschiedenen Bereichen des effektiven He-LiF(001)-Potentials stattfindet. Das führt zu einer Änderung des Weglängendifferenz zwischen *A* und *B* und daher ebenfalls zu einer zusätzlichen Phasenverschiebung.

Hingegen bei gleichem E_\perp und damit gleichem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ bleiben sowohl die Trajektorien *A* und *B* als auch deren Phasenbeziehung in der Projektion auf die Ebene senkrecht zur Gitterführungsrichtung gleich. Für die Intensitätsverteilung in Abb. 5.19d wurde die Projektilenergie E_0 nach Gl. (2.19) so eingestellt, dass sie trotz kleinerem Einfallswinkel

die gleiche Senkrechterenergie E_{\perp} und damit nach Gl. (2.34) die gleiche Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ wie in Abb. 5.19a aufweist. Abgesehen von der Skalierung ähneln sich die beiden Intensitätsverteilungen. Mit Erhöhung von E_0 verringert sich nach Gl. (5.2) der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$, jedoch sind nach Gl. (2.62) die Ablenkwinkel θ_n der Bragg-Reflexe identisch. Daher werden die Intensitäten innerhalb des jeweiligen Kreistrings elastisch gestreuter Projektile aus Abb. 5.19a und d in Abb. 5.20b als Funktion des Ablenk winkels θ dargestellt. Die beiden auf θ projizierten Intensitätsverteilungen unterscheiden sich kaum. Sowohl die relativen Intensitäten als auch die Winkelpositionen der Bragg-Reflexe sind bei gleichem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} .

Im Vergleich der beiden Intensitätsverteilungen für $E_0 = 2,1 \text{ keV}$ fällt auf, dass während in Abb. 5.19d die Beugungsordnung $n = 0$ keine Intensität aufweist und der benachbarte Reflex $n = 1$ relativ intensiv ist, dies in Abb. 5.19b genau umgekehrt ist. Dieser Effekt ist charakteristisch für die Beugung an einer sinusförmigen Wand. Wie in Abschn. 2.3.4.3 diskutiert, weist wegen $J'_0 = -J_1$ die Beugungsordnung $n = 1$ immer genau dann keine Intensität auf, wenn die Intensität der Beugungsordnung $n = 0$ am intensivsten ist (siehe Abb. 2.19).

In Abb. 5.21 ist die relative Intensität der Bragg-Reflexe der Ordnung $n = 0$ und $n = 1$ für Streuung von ^3He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ mit Projektilenergien $0,4 \text{ keV} < E_0 < 10 \text{ keV}$ bei verschiedenen jeweils konstanten Einfallswinkeln Φ_{in} entlang $\langle 100 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrecht-Wellenzahl $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$ dargestellt (offene Symbole). Die relative Intensität ist hier definiert als die Intensität in einem konstant großen Auswahlfenster polarer und azimuthaler Austrittswinkel auf dem Kreis elastisch gestreuter Projektile bei $\Psi_0 = 0$ bzw. $\Psi_1 = \lambda_{\text{dB}}/d$ nach Gl. (5.1) bezogen auf die Gesamtintensität der vom MCP-Detektor registrierten Ereignisse. Da bei der streifenden Streuung fast alle Projektile den MCP-Detektor treffen, ist die Gesamtintensität proportional zu der des einlaufenden Atomstrahls. Die einem Bragg-Reflex zugeordnete Intensität bezüglich der Gesamtintensität hängt damit von der Größe des Auswahlfensters ab, nicht aber die Position der Maxima und Minima als Funktion von $\lambda_{\text{dB}\perp}$ bzw. k_{\perp} . Die Größe des Auswahlfensters wurde an die polare Breite der Bragg-Reflexe angepasst, die bei höherem Φ_{in} größer ist. Die Modulation der Intensität der Bragg-Reflexe mit k_{\perp} ist unabhängig vom Einfallswinkel. Zum Vergleich sind auch die skalierten Daten von Rousseau *et al.* [26] für Streuung von ^3He mit konstanter Projektilenergie $E_0 = 0,2 \text{ keV}$ als volle Kreise gegeben. Das Maximum für $n = 1$ bei $k_{\perp} \approx 19 \text{ \AA}^{-1}$ stimmt überein. Für $n = 0$ und $n = 1$ ist die Modulation näherungsweise gegenphasig, wobei die

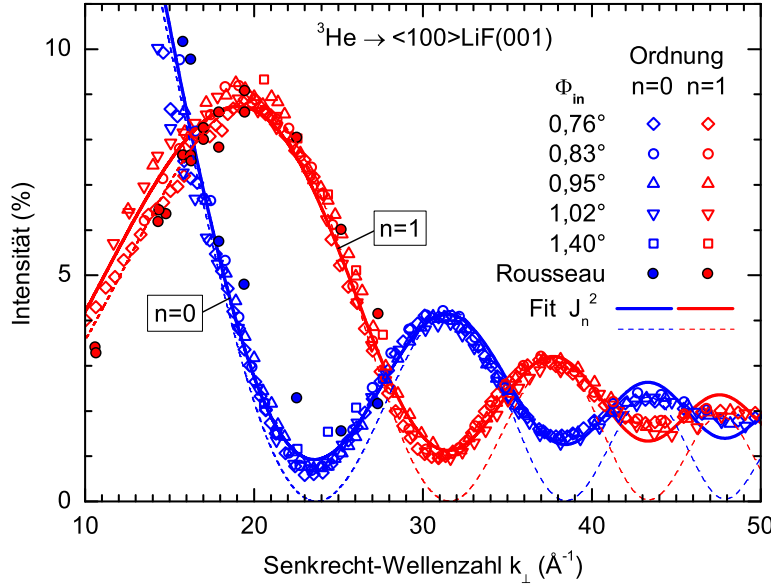


Abb. 5.21: Relative Intensität der Bragg-Reflexe der Ordnung $n=0$ (blau) und $n=1$ (rot) für Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrecht-Wellenzahl $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$ (offene Symbole). Kurven: Beste Anpassung von Gl. (2.78) mit (durchgezogen) und ohne (gestrichelt) Dämpfungsfunktion (siehe Text). Volle Kreise: Skalierte Daten von Rousseau *et al.* [26].

Position der Maxima von $n=0$ mit denen der Minima von $n=1$ genau zusammenfallen. Dies ähnelt dem Verlauf der Bessel-Funktionen J_0^2 und J_1^2 (vergl. Abb. 2.19) aus Gl. (2.78). Jedoch sind die Minima größer als Null. Dies spiegelt den kontinuierlichen Übergang von Beugung zu klassischer Streuung wider. Wenn der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ mit wachsendem E_0 abnimmt, tragen die Ausläufer der benachbarten Beugungslinien zunehmend zur Intensität innerhalb des Auswahlfensters bei. Dadurch wird die Intensität eines Reflexes auch bei destruktiver Interferenz nicht Null. Der Wert der Minima steigt daher mit wachsendem k_{\perp} . Wenn die azimutale Breite w der Beugungslinien mit E_{\perp} bzw. k_{\perp} steigt, wird die Amplitude zusätzlich gedämpft. Für $k_{\perp} > 50 \text{ \AA}^{-1}$ ist dann kein Unterschied mehr zwischen der Intensität im Fenster für $n=0$ und $n=1$ festzustellen, die Intensitätsverteilung ist klassisch.

Die durchgezogenen Kurven in Abb. 5.21 repräsentieren das Ergebnis der korrelierten Anpassung der relativen Intensität von $n=0$ und $n=1$ in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (2.78) unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit der Korrugation Δz von der Senkrechtenergie E_{\perp} . Die ermittelte lineare Funktion lautet

$$\Delta z_{\text{HWN}}/\text{\AA} = 0,076 + 0,066 E_{\perp}/\text{eV} \quad (5.4)$$

für $0,1 \text{ eV} < E_{\perp} < 1,5 \text{ eV}$. Dies stimmt mit dem Ergebnis von Rousseau *et al.* [27] überein. Diese Autoren geben $\Delta z/\text{\AA} = 0,07 + 0,08 E_{\perp}/\text{eV}$ für den Bereich $0,05 \text{ eV} < E_{\perp} < 0,5 \text{ eV}$ an. Da die Korrugation der harten Wand Δz_{HWN} mit E_{\perp} steigt, wird – wie in Abschn. 2.3.7 diskutiert – die tatsächliche Korrugation des „weichen“ Potentials Δz unterschätzt. Eine diesbezügliche Korrektur wird in Abschn. 5.1.5.2 abgeschätzt. Um die automatische Kurvenanpassung zu optimieren, wurde Gl. (2.78) um eine „Dämpfungsfunktion“ bestehend aus einem monoton wachsenden Summanden (Offset) und einem monoton fallenden Faktor (Einhüllende) ergänzt⁴. Die Position der Maxima und Minima bleibt dabei unverändert. Zur Veranschaulichung sind in Abb. 5.21 dieselben Funktionen, jedoch exklusive der Dämpfungsfunktion als gestrichelte Kurven dargestellt. Die Positionen der Maxima und Minima stimmen mit den experimentellen Daten überein.

Bei der Streuung von He-Atomen entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung treten mehr Beugungslinien auf als bei der Streuung entlang $\langle 100 \rangle$ unter gleichen Bedingungen. Die Intensitätsoszillationen sind stärker von $\lambda_{\text{dB}\perp}$ abhängig, die Beugungsmuster daher komplexer. Als repräsentatives Beispiel sind in Abb. 5.22 Beugungsmuster für die Streuung von ^3He -Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung der $\text{LiF}(001)$ -Oberfläche mit sechs verschiedenen Projektilenergien E_0 bei gleichem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 0,99^\circ$ gezeigt. Die Maxima der Beugungslinien liegen auf dem eingezeichneten Halbkreis für elastisch gestreute Projektile. Mit Erhöhung von E_0 ändert sich neben dem Beugungslinienabstand auch die Intensität der einzelnen Reflexe. Während bei $E_0 = 0,65 \text{ keV}$ in Abb. 5.22c die Ordnung $n = 0$ bei $\Psi = 0$ keine Intensität aufweist und die benachbarten Reflexe $n = \pm 1$ relativ intensiv sind, ist es bei $E_0 = 0,35 \text{ keV}$ und $1,00 \text{ keV}$ in Abb. 5.22a bzw. e umgekehrt. Bei den Zwischenwerten $E_0 = 0,50 \text{ keV}$ bzw. $0,80 \text{ keV}$ in Abb. 5.22b und d befinden sich einige Maxima abwechselnd etwas unterhalb und oberhalb des eingezeichneten Halbkreises (siehe auch Abb. 5.10a und 5.2c). Projektile, die aufgrund der endlichen polaren Divergenz des einlaufenden Atomstrahls und der thermischen Auslenkungen der Atome der Oberfläche unter größerem/kleinerem polaren Austrittswinkel Φ_{out} gestreut werden, haben eine geringere/höhere Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$. Je nachdem, ob ein geringeres oder höheres $\lambda_{\text{dB}\perp}$ die Bedingung für konstruktive Interferenz zwischen den Trajektorien vom Typ *A* und *B* besser erfüllt, erscheint das Maximum entlang einer Beugungslinie bei etwas größerem oder kleinerem Φ_{out} , als es der eingezeichnete Halbkreis

⁴Die Dämpfungsfunktion ist für $n = 0$ und $n = 1$ identisch. Die Wahl der monotonen Funktionen ist irrelevant, es wurde hier jeweils eine einfache Exponentialfunktion verwendet.

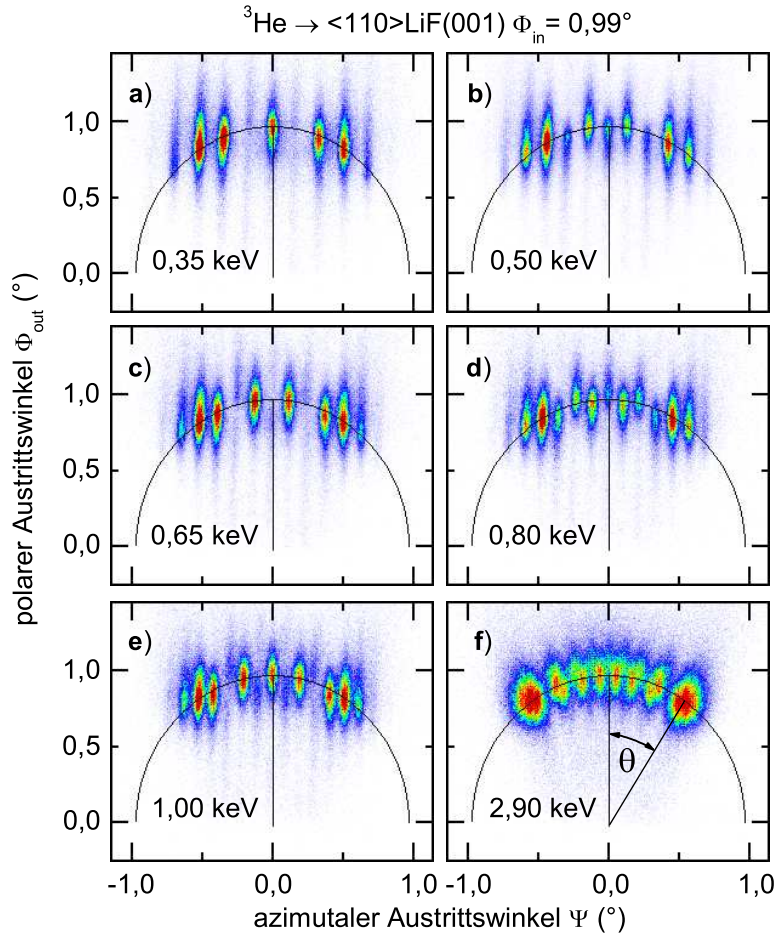


Abb. 5.22: Beugungsmuster bei Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 0,99^\circ$ mit einer Projektilenergie von a) $E_0 = 0,35$ keV, b) 0,50 keV, c) 0,65 keV, d) 0,80 keV, e) 1,00 keV und f) 2,90 keV. Der eingezeichnete Halbkreis mit Radius Φ_{in} markiert die Koordinaten für elastisch gestreute Projektile.

vorgibt. Mit steigendem E_0 tritt das m -te Maximum einer Beugungslinie n daher zuerst oberhalb des Halbkreises auf, gewinnt zunehmend an Intensität, wobei sich Φ_{out} verringert, bis es auf dem Halbkreis seine größte relative Intensität erreicht. Danach verschiebt es sich weiter zu kleineren Φ_{out} und verschwindet dann unterhalb des Halbkreises, während die Intensität des Maximums $m + 1$ oberhalb des Halbkreises zunimmt.

In Abb. 5.23 ist die relative Intensität der Bragg-Reflexe der Ordnung $n = 0$ und $n = 1$ für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung als Funktion von $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$ dargestellt (offene Symbole). Dafür wurde bei verschiedenen jeweils konstanten

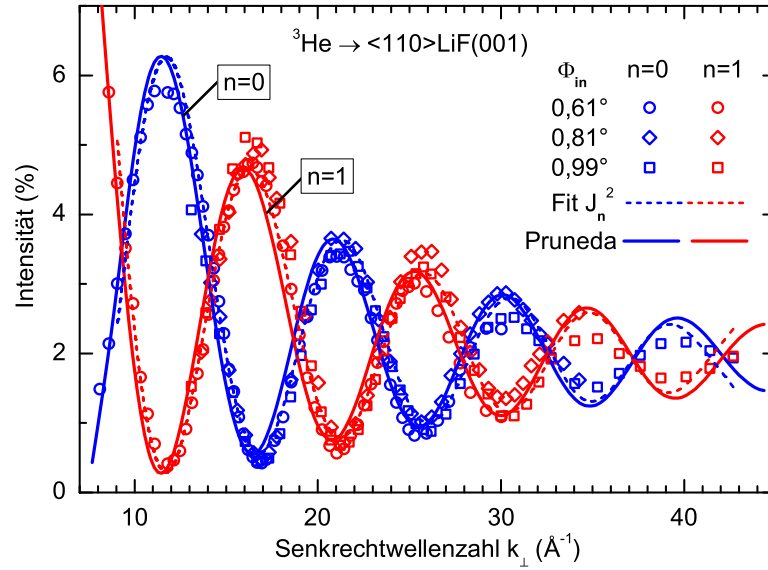


Abb. 5.23: Relative Intensität der Bragg-Reflexe der Ordnung $n=0$ und $n=1$ für Streuung von ^3He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} als Funktion der Senkrecht-Wellenzahl $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$ (Symbole) und theoretische Intensität nach Gl. (2.78) aus der besten Anpassung der Korrugation unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit $\Delta z(E_{\perp})$ und unter Verwendung der Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ des von Pruneda [261, 277] mittels DFT berechneten He-LiF(001)-Potentials (Abb. 5.26) mit gleicher Dämpfungsfunktion (siehe Text).

Einfallswinkeln Φ_{in} die Projektilenergie E_0 im Bereich von 0,3 keV bis 5,5 keV variiert. Die Modulation der Intensität in Abhängigkeit von k_{\perp} ist – wie bei $\langle 100 \rangle$ in Abb. 5.21 – unabhängig von Φ_{in} . Wie die in Abb. 2.17b gezeigte Intensität aus der quantenmechanisch exakten Theorie der Beugung an einer harten sinusförmigen Wand [178, 179] verlaufen die Kurven für $n=0$ und $n=1$ gegenphasig. Die gestrichelten Kurven in Abb. 5.23 repräsentieren das Ergebnis der korrelierten Anpassung der relativen Intensität von $n=0$ und $n=1$ in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (2.78) mit der gleichen Dämpfungsfunktion (siehe oben) unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit der Korrugation Δz von der Senkrechterenergie E_{\perp} . Die so ermittelte lineare Funktion für die beste Anpassung im experimentell untersuchten Bereich $0,05 \text{ eV} < E_{\perp} < 1,0 \text{ eV}$ ist

$$\Delta z/\text{\AA} = 0,325 + 0,0139 E_{\perp}/\text{eV} \quad (5.5)$$

In Abb. 5.24 sind die Intensitäten in einem schmalen Intervall um den Kreis elastisch gestreuter Projektile aus Abb. 5.22 als Funktion des Ablenkungswinkels θ dargestellt, welcher über Gl. (2.22) mit dem azi-

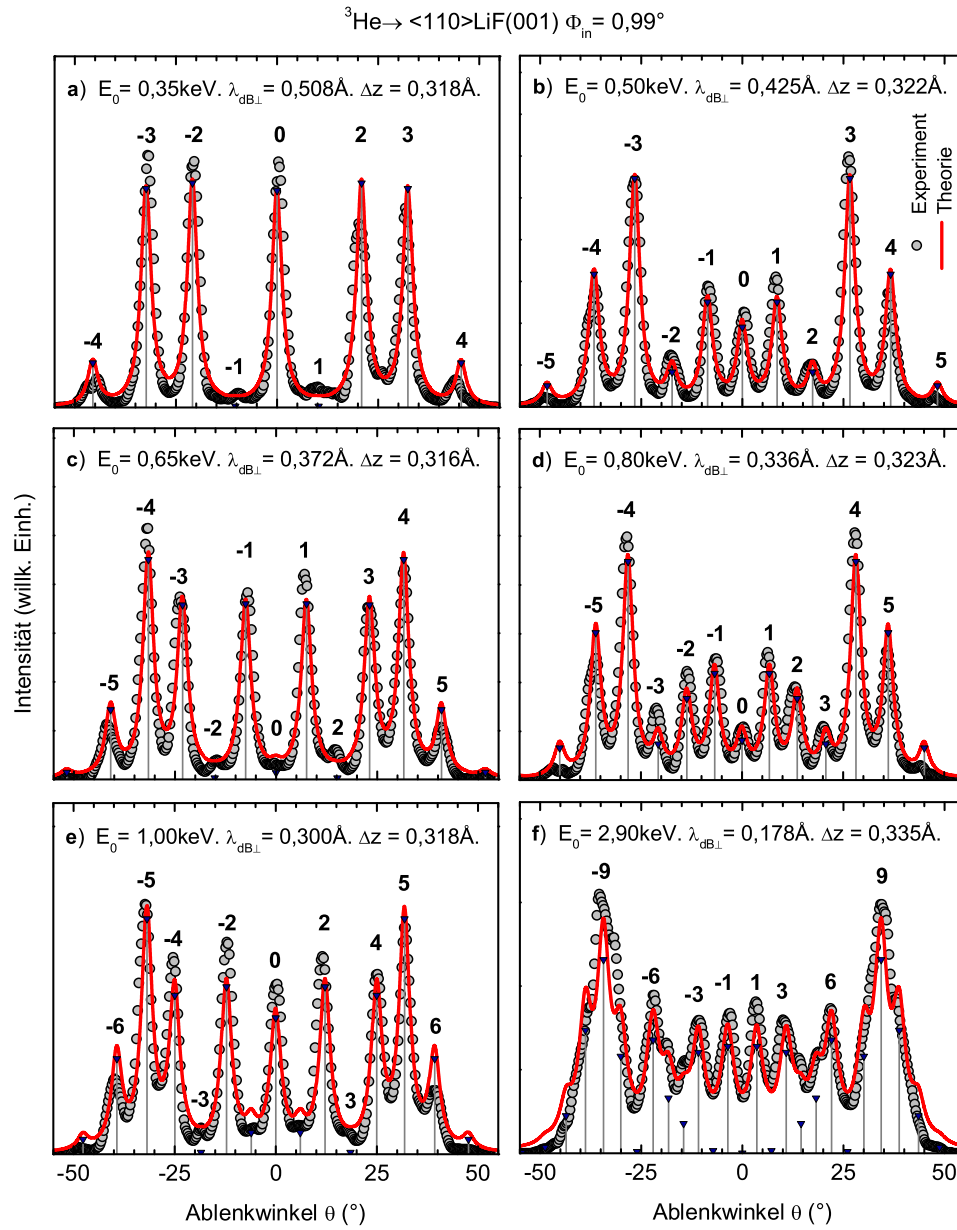


Abb. 5.24: Projektion der Intensität innerhalb eines schmalen Intervalls um den Kreis mit Radius Φ_{in} in den Beugungsmustern aus Abb. 5.22 als Funktion des Ablenkungswinkels θ (graue Kreise) und beste Anpassung der Intensität aller Beugungsmaxima nach Gl. (5.8) (rote Kurve). Balken: Position und Intensität der Bragg-Reflexe.

mutalen Austrittswinkel Ψ verknüpft ist (graue Kreise). Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung. Da jede Beugungslinie $|n| > 0$ unabhängig von der Gitterführungsrichtung das gleiche Profil wie $n = 0$ aufweist, kann das projizierte Beugungsmuster als eine mehrfache Überlagerung des Profils der bei der Streuung in Random-Richtung einzig auftretenden Beugungslinie $n = 0$ dargestellt werden. Dieses Profil kann sehr genau mit einer Pseudo-Voigt-Funktion Gl. (5.3) mit $\mu > 0,5$ beschrieben werden. Zur Reduktion der freien Parameter bei der Anpassung wird im Folgenden $\mu = 1$ gesetzt, d.h. das Profil wird durch eine Lorentz-Kurve genähert. Das projizierte Beugungsmuster ergibt sich dann als Superposition von Lorentz-Kurven zu

$$I(\theta) = \sum_{n=-n_{\max}}^{n_{\max}} \frac{c_n}{4((\theta - \theta_n)/w_L)^2 + 1} \quad (5.6)$$

wobei die Position des Maximums jeder Lorentz-Kurve θ_n durch die Bragg-Bedingung Gl. (2.62) gegeben ist und die Halbwertsbreite w_L für alle Ordnungen gleich und mit der Breite der Ordnung $n = 0$ bei Streuung entlang einer Random-Richtung unter sonst gleichen experimentellen Bedingungen identisch ist. Die Normierungskonstanten c_n werden aus der besten Anpassung von Gl. (5.6) an die gemessene Intensitätsverteilung unter der Randbedingung $c_n = c_{-n}$ gewonnen, womit die vorliegende Symmetrie ausgenutzt wird. Die Intensität einer Beugungsordnung n entspricht der Fläche der zugehörigen Lorentz-Kurve $A_n = c_n w_L \pi / 2$. Da w_L für alle n gleich ist, ergibt sich die relative Intensität einer bestimmten Ordnung \tilde{n} zu

$$I_{\tilde{n}} = A_{\tilde{n}} \bigg/ \sum_{n=-n_{\max}}^{n_{\max}} A_n = c_{\tilde{n}} \bigg/ \sum_{n=-n_{\max}}^{n_{\max}} c_n \quad (5.7)$$

wobei n_{\max} die höchste auftretende Beugungsordnung $n_{\max} < d/\lambda_{\text{dB}\perp}$ ist. Wird die Fläche der projizierten Intensitätsverteilung auf 1 normiert, dann ist $\sum A_n = 1$ und $I_{\tilde{n}} = A_{\tilde{n}}$.

Unter der Annahme, dass die Äquipotentiallinien des effektiven Wechselwirkungspotentials näherungsweise sinusförmig sind, können die relativen Intensitäten der Ordnungen bei der jeweils gegebenen Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ mit der relativen Intensität nach Gl. (2.76) als Funktion der Korrugation Δz verglichen werden. Auf diese Weise kann die Korrugation des effektiven Potentials in Hartewand-Näherung als Funktion der Senkrechterenergie $E_{\perp} = h^2/2M\lambda_{\text{dB}\perp}^2$ ermittelt werden. Als Beispiel sind in Abb. 5.25a die Abweichung der relativen Intensitäten der Ordnungen $0 \leq n \leq 4$ aus der Anpassung von Gl. (5.6) an die experimentellen Daten aus Abb. 5.24b von den

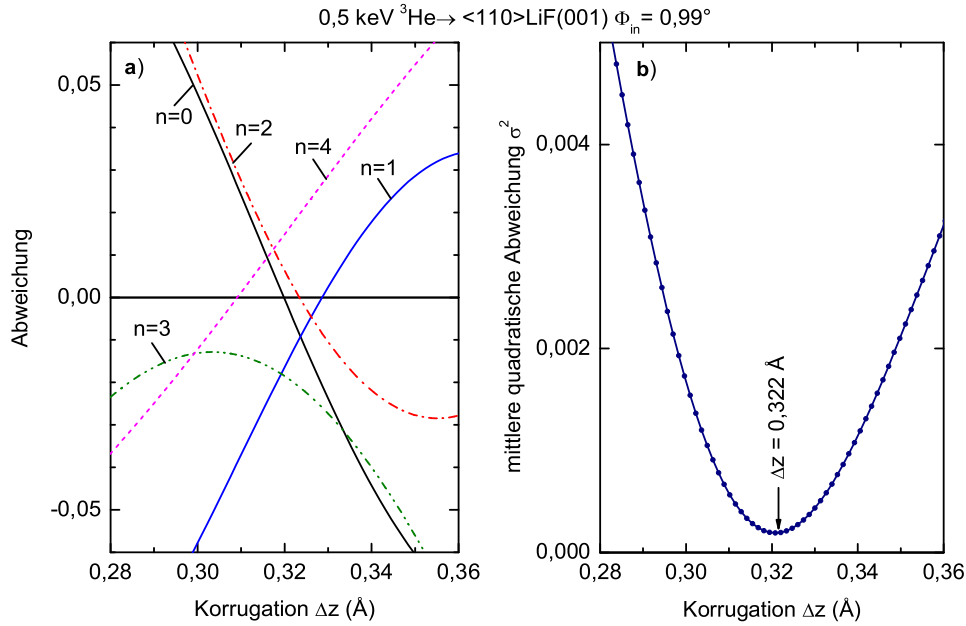


Abb. 5.25: **a)** Abweichung der relativen Intensität der Beugungsordnung $n = 0$ bis $n = 4$ aus der Anpassung von Gl. (5.6) an die experimentellen Daten aus Abb. 5.24b von der theoretischen relativen Intensität in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (2.76) als Funktion der Korrugation Δz . **b)** gemittelttes Quadrat der Abweichung aus a).

theoretischen relativen Intensitäten nach Gl. (2.76) als Funktion der Korrugation Δz dargestellt. Während für $n = 0$ und $n = 2$ die theoretische Intensität mit steigendem Δz von einem zu hohen Wert abnimmt, bis bei $\Delta z \approx 0,32 \text{ Å}$ eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment erreicht wird, steigt die Intensität für $n = 1$ und $n = 4$ von einem zu geringen Niveau bis die Abweichung ebenfalls bei $\Delta z \approx 0,32 \text{ Å}$ am geringsten ist. Die Intensität von $n = 3$ hat im dargestellten Bereich von Δz ein Maximum, die Abweichung ist daher nicht stark von Δz abhängig. Die minimale Abweichung bei $\Delta z \approx 0,305 \text{ Å}$ ist nur geringfügig kleiner als bei $\Delta z = 0,32 \text{ Å}$. In Abb. 5.25b ist das gemittelte Quadrat der Abweichungen aus Abb. 5.25a für den selben Bereich von Δz dargestellt. Die Funktion zeigt ein Minimum für die beste Anpassung von $\Delta z = (0,322 \pm 0,007) \text{ Å}$. Die Unsicherheit gibt dabei an, um welchen Betrag Δz geändert werden muss, um die quadratische Abweichung zu verdoppeln. Je höher das Minimum der quadratischen Abweichung und je breiter die parabelähnliche Funktion $\sigma^2(\Delta z)$ ist, desto größer ist die Unsicherheit der Anpassung. Sie ist ein Maßstab für die Wichtung zwischen den Ergebnissen für Δz aus den Anpassungen an verschiedene experimentelle Daten.

Die Intensitätsverteilung bei gegebenem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ ergibt sich dann durch

Einsetzen von Gl. (2.62) und Gl. (2.76) unter Anwendung von Gl. (2.65) in Gl. (5.6) zu

$$I(\theta) = \sum_{n=-n_{\max}}^{n_{\max}} \frac{J_n^2 \left(\Delta z \pi \left(1 + \sqrt{1 - (\lambda_{\text{dB}\perp} n/d)^2} \right) / \lambda_{\text{dB}\perp} \right)}{4 \left((\theta - \arcsin(\lambda_{\text{dB}\perp} n/d)) / w_L \right)^2 + 1} \quad (5.8)$$

wobei d die theoretische Breite des Gitterführungschanals und Δz die Korrugation als Ergebnis der besten Anpassung wie in Abb. 5.25b ist⁵. Die roten Kurven in Abb. 5.24 zeigen die theoretische Intensität nach Gl. (5.8) mit der jeweils angegebenen Korrugation Δz aus der besten Anpassung. Die grauen Balken mit schwarzen Dreiecken markieren die Position θ_n und die Höhe der Maxima c_n der Lorentz-Kurven.

In Abb. 5.26 sind die Ergebnisse der besten Anpassung der Korrugation Δz an die relativen Intensitäten aller Beugungsmaxima – so wie in Abb. 5.24 exemplarisch gezeigt – bei Streuung von ^3He - und ^4He -Atomen an LiF(001) entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} für Projektilenergien E_0 im Bereich von 0,35 keV bis 3,5 keV als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} dargestellt (offene Symbole). Obwohl die Beugungsmuster sehr sensibel von Φ_{in} abhängen und sich für ^3He und ^4He auch bei gleichem E_{\perp} unterscheiden, ergibt sich im Rahmen der Messunsicherheit die gleiche Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$. Dies zeigt die Gültigkeit der Näherungen für Gl. (5.8) in diesem Energiebereich.

$\Delta z(E_{\perp})$ ist eine näherungsweise konstante Funktion mit nur leichtem Anstieg von $\Delta z = 0,32 \text{ \AA}$ zu $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$. Dies stimmt sehr genau mit dem Ergebnis aus der Anpassung von Gl. (2.78) unter Annahme einer linearen Abhängigkeit von $\Delta z(E_{\perp})$ an die Modulation der Amplituden von $n=0$ und $n=1$ überein. Zum Vergleich ist die aus der Anpassung in Abb. 5.23 resultierende lineare Funktion Gl. (5.5) in Abb. 5.26 als graue durchgezogene Gerade dargestellt.

Der gelbe Stern in Abb. 5.26 ist das Ergebnis aus der Analyse der Daten der Streuung thermischer He-Atome ($E_0 = 63 \text{ meV}$) an LiF(001) unter fast senkrechtem Einfallswinkel in Harte-Wand-Näherung von Boato *et al.* [186]. Da bei der Streuung thermischer He-Atome (HAS) nur die Korrugation ζ der dreidimensionalen harten Wand bestimmt wurde, welche die gleichen Beugungsmuster wie im Experiment erzeugt, sind diese Ergebnisse nicht direkt mit der Korrugation Δz des axial gemittelten Potentials vergleichbar. Nimmt man jedoch ein mit dem Abstand zur Oberfläche z exponentiell fallendes Potential an, welches die gleiche Korrugation ζ wie die harte Wand aus Ref. [186] aufweist, dann

⁵Gl. (5.8) ist noch nicht normiert, für den Vergleich mit dem Experiment wird die Gesamtintensität mit $\hat{I}(\theta) = I(\theta) / \int_{-\pi/2}^{\pi/2} I(\tilde{\theta}) d\tilde{\theta}$ auf 1 normiert.

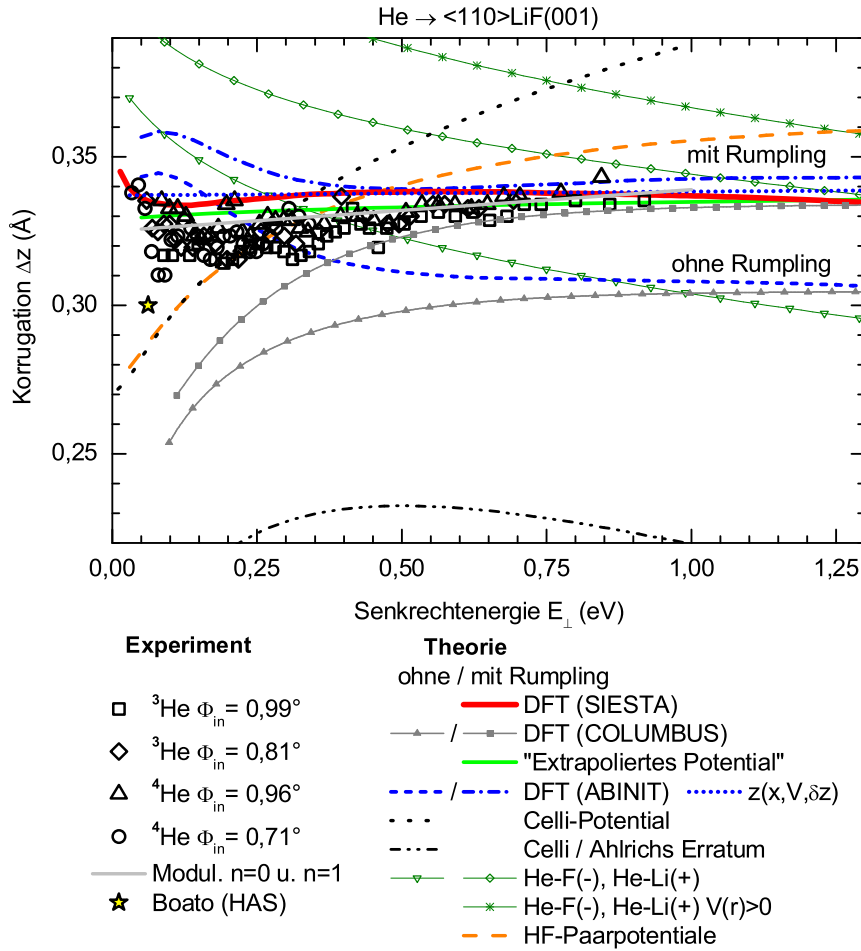


Abb. 5.26: Korrugation Δz des effektiven He-LiF(001)-Potentials für Streuung entlang $\langle 110 \rangle$ -Richtung als Funktion von E_{\perp} . Offene Symbole: aus der besten Anpassung von Gl. (5.8) an die relative Intensität aller Beugungsmaxima – so wie in Abb. 5.24 – für ^3He und ^4He mit $0,4 \text{ keV} < E_0 < 3,5 \text{ keV}$ unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} . Graue Gerade: Gl. (5.5) aus der Anpassung der Modulation der Intensität von $n=0$ und $n=1$ (Abb. 5.23). Gelber Stern: aus der thermischen He-Streuung (HAS) von Boato *et al.* [186]. Kurven: entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelte theoretische He-LiF(001)-Potentiale aus den DFT-Rechnungen von Pruneda [261, 277] für eine LiF(001)-Oberfläche mit Rumpling $\delta z = 0,049 \text{ \AA}$ (rot), von Aigner *et al.* [205, 278, 279] ohne (graue Quadrate) und mit Rumpling $\delta z = 0,053 \text{ \AA}$ (graue Dreiecke) sowie des daraus „extrapolierten Potentials“ [205], welches in Ref. [279] verwendet wurde (grün), und von Wirtz [280] ohne (blau gestrichelt) und mit Rumpling $\delta z = 0,053 \text{ \AA}$ (blau Strich-Punkt) sowie aus der analytischen Funktion Gl. (5.14) mit $\delta z = 0,049 \text{ \AA}$ (blau gepunktet), aus dem Potential von Celli *et al.* [281] mit original Parametern (schwarz gepunktet) und korrigierten Parametern aus dem Erratum von Ahlrichs *et al.* [282] (Strich-Punkt-Punkt), aus der Superposition von He-Li $^+$ -[283] und He-F $^-$ -Paarpotentialen [284] ohne (grüne Dreiecke) und mit Rumpling $\delta z = 0,053 \text{ \AA}$ mit (grüne Rauten) und ohne Anziehung (grüne Sterne) sowie HF-Paarpotentialen [54, 55] (orange gestrichelt) mit Rumpling $\delta z = 0,053 \text{ \AA}$.

kann daraus die Korrugation des axial gemittelten Potentials bestimmt werden. Für ein korrigiertes Morse-Potential [196] unter Vernachlässigung eines anziehenden Anteils [281]

$$V(x, y, z) = D_0 \exp \left(-2\alpha \left[z - z_0 - \frac{\zeta}{2} \left(\cos \frac{2\pi x}{a} + \cos \frac{2\pi y}{a} \right) \right] \right) \quad (5.9)$$

mit der Korrugation $\zeta = 0,3 \text{ \AA}$ aus Ref. [186] beträgt die Korrugation des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentials $\Delta z = \zeta$. Der gelbe Stern in Abb. 5.26 entspricht also einem Potential, wie es von Boato *et al.* [186] ermittelt wurde. Der Wert liegt etwas unterhalb der hier mit der Beugung schneller He-Atome bestimmten Korrugation. Die in Harte-Wand-Näherung aus HAS-Daten abgeleitete Korrugation unterschätzt in der Regel die tatsächliche Korrugation etwas [70, 75, 178]. Da Δz näherungsweise unabhängig von E_\perp ist, sind hier – wie in Abschn. 2.3.7 diskutiert – die Abweichungen aufgrund der Näherung durch die harte Wand bei der Analyse der Beugung schneller Atome hingen zu vernachlässigen (Fall $\alpha_A = \alpha_B$ aus Abb. 2.26a).

Zusammenfassung: Die relative Intensität der Beugungsordnungen bei Streuung von He-Atomen an LiF(001) ist bei konstanter Senkrechte-Broglie-Wellenlänge unabhängig von Projektilenergie und Einfallswinkel. Die Oszillationen der relativen Intensitäten lassen sich mit dem Modell einer sinusförmig korrigierten harten Wand gut beschreiben. Die daraus abgeleitete Korrugation des effektiven Wechselwirkungspotentials ist mit dem Ergebnis aus der Streuung thermischer He-Atome vergleichbar.

5.1.5 Das He-LiF(001)-Potential

Im Gegensatz zur Streuung von Atomen mit thermischen Energien mit großem Einfallswinkel, bei der die Wendepunkte der Trajektorien näherungsweise mit der zur Energie korrespondierenden Äquipotentialfläche zusammenfallen $V(x, y, z) = E_\perp \approx E_0$, bewegt sich das Projektilatom bei der streifenden Streuung mit Energien im Bereich von keV parallel zur Oberfläche und erreicht daher auch Abstände zu den Targetatomen mit $V(x, y, z) > E_\perp$. Das effektive Potential ergibt sich aus der Mittlung des Potentials entlang der Atomketten, wobei das interatomare Potential im ganzen Abstandsbereich bis hin zum Punkt nächster Annäherung gegeben sein muss. Um die relative Intensität der Bragg-Reflexe bei der Beugung schneller Atome beschreiben zu können bzw. die im vorherigen Abschnitt bestimmte Korrugation des axial gemittelten Potentials mit theoretischen Potentialen vergleichen zu können, reichen daher die

in der Literatur zu findenden Parameter für eine dreidimensionale korrigierte harte Wand [167, 181, 182, 186, 187] nicht aus. Für die axiale Mittlung und die Trajektorien-Simulation wird das vollständige „weiche“ Potential benötigt. In diesem Abschnitt werden verschiedene Ansätze für ein realistisches He-LiF(001)-Potential betrachtet.

5.1.5.1 Das Celli-Potential

Das Potential von Celli *et al.* [281] gilt als das beste derzeit verfügbare „weiche“ He-LiF(001)-Potential [285, 286] für die Streuung mit thermischen Energien. Es wird hier stellvertretend für die He-LiF(001)-Potentiale diskutiert, die nach dem gleichen Prinzip aufgebaut sind [16, 287–292]. Der analytische Ausdruck in Ref. [281] lässt sich auch für kleinere Abstände als den für thermische He-Streuung relevanten Bereich auswerten. Mit dieser Extrapolation zu höheren Energien können die Beugungsmuster schneller He-Atome aber nur unzureichend beschrieben werden. Dass dies kein Widerspruch darstellt, soll in diesem Abschnitt näher erläutert werden.

Das Celli-Potential setzt sich aus den paarweisen Beiträgen für die Wechselwirkung zwischen dem He-Projektil und den F^- - bzw. Li^+ -Ionen der Oberfläche $V_{sp}(x, y, z)$ und einem Beitrag durch die Anziehung zwischen der Oberfläche und dem durch das elektrische Feld \vec{E} der Gitter-Ionen induzierten Dipol des polarisierbaren He-Atoms $V_{id}(x, y, z) = -\frac{1}{2}\alpha \left| \vec{E}(x, y, z) \right|^2$ zusammen [292]. Dabei ist α die Polarisierbarkeit des He-Atoms. Im Unterschied zur Superposition von interatomaren Paarpotentialen wird hier bei der Berechnung von $V_{sp}(x, y, z)$ bei der paarweisen Wechselwirkung $V(r)$ der Beitrag durch die Polarisation des He-Atoms ausgenommen. Diese Beiträge sind nämlich nicht linear kombinierbar, da ein He-Atom, das bereits von einem Gitter-Ion polarisiert wurde, nicht durch die benachbarten Ionen in gleicher Weise zusätzlich polarisiert werden kann. Das Potential der Wechselwirkung zwischen den Ionen und dem induzierten Dipol $V_{id}(x, y, z)$ wird daher separat behandelt [292]. Für $V_{id}(x, y, z)$ wird in Ref. [281] folgende Näherung für $z \gg 0,2 \text{ \AA}$ angegeben (in a.u.)

$$V_{id}(x, y, z) = \frac{64\pi^2\alpha \exp(-4\pi z/a)}{a^4 \left(1 + \exp(-\pi\sqrt{2})\right)^2} \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi x}{a}\right) \cos\left(\frac{2\pi y}{a}\right)\right) \quad (5.10)$$

mit $\alpha = 0,206 \text{ \AA}^3 = 1,39 \text{ a.u.}$, wobei a die Gitterkonstante der primitiven Einheitszelle der Oberfläche ist. Diese Näherung ist nur gültig, wenn die Li^+ - und die F^- -Ionen in derselben Ebene liegen, d.h. ein Rumpling

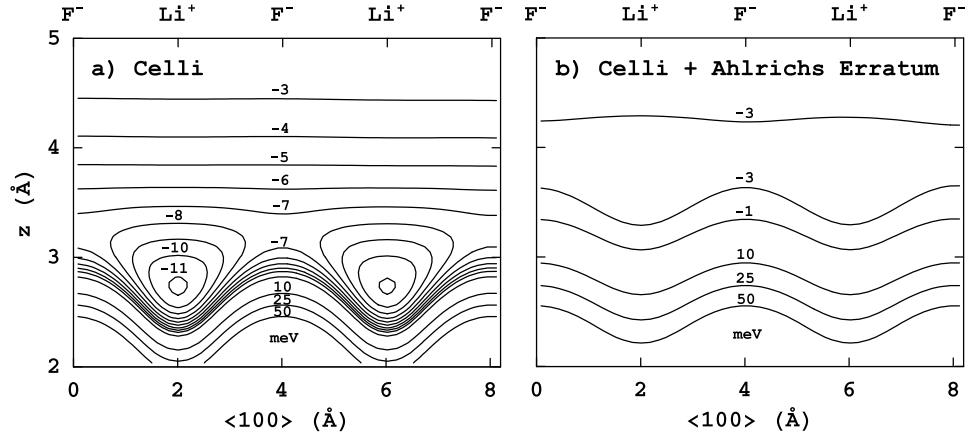


Abb. 5.27: He-LiF(001)-Potential von Celli *et al.* [281] mit a) den Original-Parametern und b) den korrekten Born-Mayer-Parametern für den repulsiven Anteil des He-F⁻-Potentials aus Ref. [282]. Orte gleicher Energie $V(x, y, z) = \text{konst}$ für -11 bis -3, -1, 10, 25 und 50 meV des (ungemittelten) Potentials als Funktion der Position entlang der $\langle 100 \rangle$ -Atomkette.

kann in Gl. (5.10) nicht berücksichtigt werden. Die paarweise Wechselwirkung $V(r)$ setzt sich aus einem Born-Mayer-Term $A \exp(-br)$ für die abstoßende Wechselwirkung und dem C_6 -Term der Dispersionsreihe [63] für die anziehenden Van-der-Waals-Kräfte zusammen,

$$V(r) = A \exp(-br) - \left(1 - \sum_{k=0}^6 \frac{(br)^k}{k!} \exp(-br) \right) \frac{C_6}{r^6} \quad (5.11)$$

wobei die Dispersionskonstante C_6 für das stärkere He-F⁻-Potential empirisch angepasst wurde [281]. Bei der Superposition der paarweisen Beiträge $V(r)$ für He-F⁻ und He-Li⁻ ist zu beachten, dass aufgrund der langreichweitigen Van-der-Waals-Kräfte die Gitter-Ionen bis hin zur sechsten Lage berücksichtigt werden müssen.

In Abb. 5.27a ist das mit Gl. (5.11) und Gl. (5.10) berechnete He-LiF(001)-Potential von Celli *et al.* [281] dargestellt. Diese Grafik stimmt exakt mit Fig. 6a aus Ref. [281] überein. Das Potential hat ein Minimum an der Position des Li⁺-Ions und ein Maximum über dem F⁻-Ion. AFM-Aufnahmen der LiF(001)-Oberfläche zeigen auch das eine Untergitter als Berge und das andere als Mulden [293]. Wird dieses Potential entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelt und die Korrugation Δz in Abhängigkeit der zu den Äquipotentialflächen korrespondierenden Senkrechterenergie $V(x, z) = E_{\perp}$ bestimmt, dann ergibt sich die in Abb. 5.26 als schwarze gepunktete Kurve gezeigte Funktion. Die Korrugation des Celli-Potentials steigt mit E_{\perp} und ist damit also keineswegs näherungsweise konstant wie die experimentellen Datenpunkte. Da der abstoßen-

de Anteil der Paar-Potentiale im Celli-Potential nur durch eine einzige Exponentialfunktion beschrieben wird, ist eine Extrapolation des Celli-Potentials zu höheren Energien keine gute Näherung. Aus ähnlichen Gründen lassen sich auch andere „weiche“ He-LiF(001)-Potentiale [210, 287–289, 291, 294] aus der Streuung thermischer Atome nicht aus dem meV-Bereich auf den eV-Bereich ausdehnen.

Jardine und Riley *et al.* [285, 286] haben gezeigt, dass das planar gemittelte Celli-Potential $V(z)$ kaum geändert werden muss, um die Theorie mit ihren experimentellen Ergebnissen in Übereinstimmung zu bringen. Das Experiment dieser Autoren ist jedoch nur auf die Form von $V(z)$ im attraktiven Bereich sensitiv und macht keine Aussage zur Korrugation oder zum Abstand z der Äquipotentialflächen vor der Oberfläche. Jedes Potential, das nach planarer Mittlung ein ähnlich geformtes Tal $V(z) < 0$ aufweist, könnte die Daten dieses Experiments ebenso gut beschreiben.

Der abstoßende Anteil in Gl. (5.11) wird durch einen Born-Meyer-Term beschrieben, dessen zwei Parameter A und b aus Anpassungen an SCF-Rechnungen von Ahlrichs *et al.* [63] stammen. Ausgerechnet die Berechnung der beim He-LiF(001)-Potential dominanten He-F⁻-Wechselwirkung war in Ref. [63] aber fehlerhaft [282]. Setzt man die korrigierten Parameter $A = 4,846$ a.u. und $b = 1,577$ a.u. für He-F⁻ aus dem Erratum [282] in Gl. (5.11) ein, dann ergeben sich aus der selben Rechnung wie für Abb. 5.27a die in Abb. 5.27b gezeigte Äquipotentiallinien. Die von Jardine und Riley *et al.* untersuchte Tiefe des Potentials im anziehenden Bereich $V < 0$ ändert sich damit beträchtlich. Das Celli-Potential ist also stark von der Wahl des abstoßenden Anteils für die dominante He-F⁻-Wechselwirkung abhängig. Die Korrugation $\Delta z(V = E_{\perp})$ des axial gemittelten Celli-Potentials mit den korrigierten Parametern ist in Abb. 5.26 als schwarze Strich-Punkt-Punkt-Kurve dargestellt. Diese stimmt noch weniger mit den experimentellen Ergebnissen überein als die Kurve für das Celli-Potential mit den ursprünglichen Parametern. Um das Potential im Bereich $V > 0,1$ eV korrekt zu beschreiben, muss V_{sp} auch in diesem Energiebereich adäquat sein. Im folgenden Abschnitt werden daher die interatomaren He-F⁻ und He-Li⁺-Potentiale im eV-Bereich genauer betrachtet.

Zusammenfassung: Die Extrapolation von He-LiF(001)-Potentialen aus dem Bereich thermischer Energien zu höheren Energien ergibt kein zur Beschreibung der Beugungsmuster schneller He-Atome geeignetes Potential.

Tab. 5.2: Parameter für die Anpassung der analytische Funktion Gl. (2.14) an die individuell berechneten He-Li- und He-F-HF-Potentiale von Gärtner [54, 55] im in Abb. 5.28 bzw. Abb. 5.29 dargestellten Energiebereich sowie an die Ab-initio-Paarpotentiale von Larsen *et al.* [283] für $V(r) < 20$ eV und Gray *et al.* [284] für $V < 9$ eV.

	i	1	2	3	4
He-Li ⁰	a_i	3,13763	0,10958	-1,90686	-0,02493
	b_i	0,57569	1,77050	0,66503	2,76872
He-Li ⁺	a_i	4,61252	-0,55522	-12,00700	9,80593
	b_i	2,35916	1,91077	3,50693	4,11049
He-Li ⁺ Larsen <i>et al.</i>	a_i	-0,02808	1,11256	2,00449	-6,80248
	b_i	0,64232	2,05693	2,41803	4,21905
He-F ⁰	a_i	16,25642	-11,22659	-5,28376	0,00704
	b_i	1,82083	2,00397	1,65843	1,0925
He-F ⁻	a_i	2,46973	-1,74974	-11,18795	18,02348
	b_i	1,31106	1,25084	4,18673	4,81626
He-F ⁻ Gray <i>et al.</i>	a_i	-0,00138	0,62613	2,41433	-23,201
	b_i	0,34542	1,53551	2,47341	3,69004

5.1.5.2 Superposition von Paar-Potentialen

Das He-Li⁺-Potential wurde sehr umfangreich theoretisch und experimentell studiert, da das System nur wenige Elektronen in abgeschlossenen Schalen enthält bzw. die Streuung von Li⁺-Ionen an einem dünnen He-Gas-Target ein relativ einfaches experimentelles Problem ist [295]. Das Potential lässt sich z.B. aus der Reichweite der Li⁺-Ionen in einer Driftröhre in Abhängigkeit der Dichte des He-Gases [296, 297] oder aus dem Energieverlust der Ionen [295] bzw. der Intensität des Ionenstrahls [298, 299] als Funktion der Weglänge ableiten.

In Abb. 5.28 sind die in der Literatur zu findenden He-Li-Paarpotentiale gegenübergestellt. Sie unterteilen sich in Gruppen für die Wechselwirkung zwischen He mit neutralen Li-Atomen [54, 55, 304, 305] und He mit Li⁺-Ionen. Letztere unterteilt sich wiederum in eine Gruppe für theoretische [63, 283, 305–317] und experimentelle [295–299, 318–320] Potentiale, die anziehende Beiträge aufgrund der Van-der-Waals-Kräfte und der Polarisation des He-Atoms durch das Li⁺-Ion berücksichtigen, und theoretische Potentiale, die das nicht tun [54, 300–303].

Die Potentiale für He-Li⁰ sind im Bereich $V(r) < 2$ eV stärker als die He-Li⁺-Potentiale. ZBL- und OCB-Potential können zwar deren Größenordnung wiedergeben, aber nicht die Kurvenform beschreiben. Für eine Näherung der He-Li⁺-Potentiale im hier relevanten Bereich $V(r) < 1$ eV sind sie ungeeignet. Die experimentellen und die theoretischen He-Li⁺-Potentiale, welche die anziehenden Kräfte berücksichtigen, stimmen miteinander gut überein. Das He-Li⁺-ab-initio-Potential

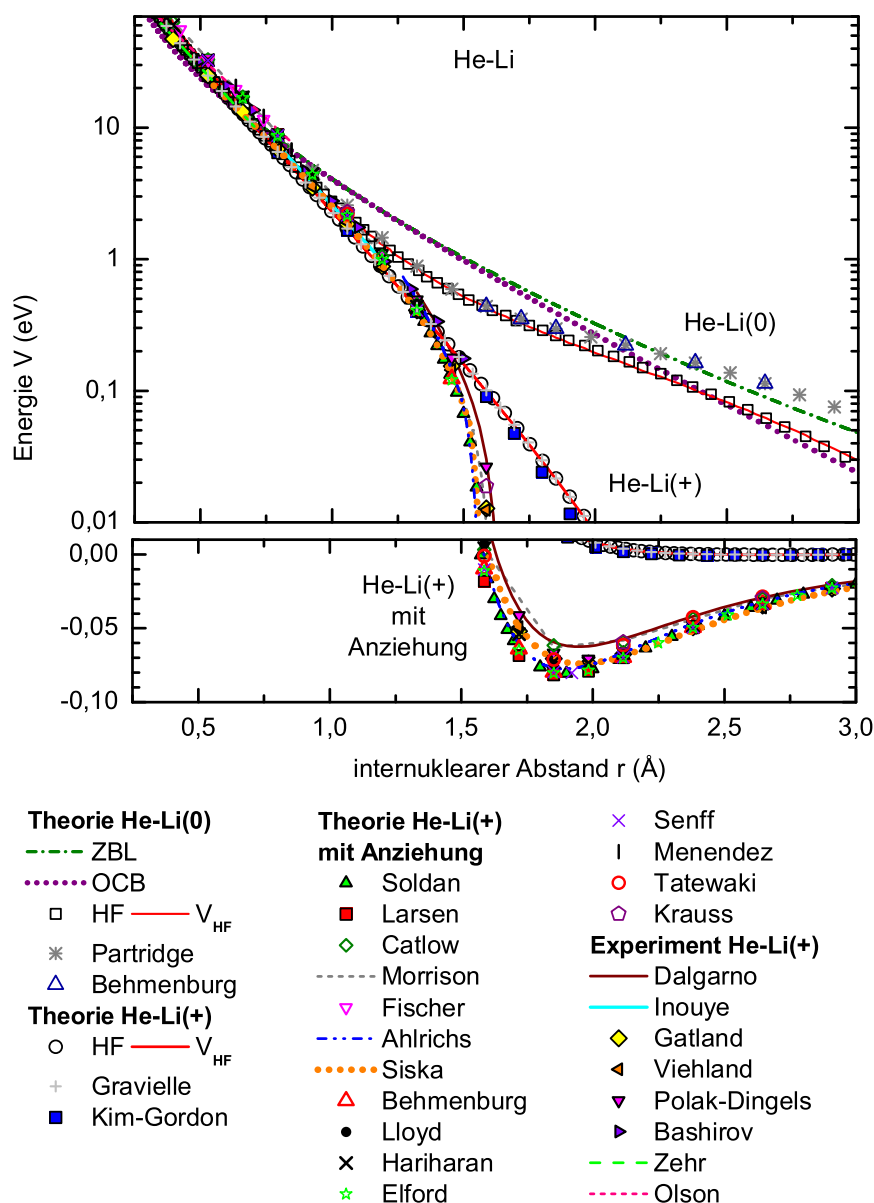


Abb. 5.28: He-Li-Potentiale. ZBL [57], OCB [49], individuelles HF-Potential von Gärtner [54] für neutrales Li^0 und ionisches Li^+ mit jeweils Anpassung einer analytischen Funktion V_{HF} nach Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 5.2, statischer Teil des Potentials von Gravielle [300–302], Kim-Gordon-Potential [303] sowie theoretische Potentiale von Partridge [304], Behmenburg [305], Soldan [306], Larsen [283], Catlow und Morrison [307, 308], Fischer [309], Ahlrichs [63], Siska [310], Lloyd [311], Hariharan [312], Elford [313], Senff [314], Menendez [315], Tatewaki [316], Krauss [317] und experimentell ermittelte Potentiale von Dalgarno [318], Inouye [299], Gatland [296], Viehland [297], Polak-Dingels [298], Bashirov [319], Zehr [295] und Olson [320]. Kurven/ Symbole sind analytisch/ tabellarisch gegeben.

von Larsen *et al.* [283] weicht kaum von den aktuellsten Ab-initio-Rechnungen von Soldan *et al.* ab, ist jedoch bis $V(r) > 30$ eV angegeben. Daher wurde es als repräsentatives He-Li⁺-Potential bei der Superposition der Paarpotentiale verwendet. Die Vernachlässigung der anziehenden Kräfte beim von Gärtner berechneten HF-Potential zeigt erst unterhalb von 0,2 eV Abweichungen. Das HF-Potential von Kim und Gordon [303] unterscheidet sich von diesem nur wenig.

Das He-F⁻-Potential ist gegenüber He-Li⁺ stärker und dominiert daher das He-LiF(001)-Potential. In einigen Modellen des He-LiF(001)-Potentials wird deshalb der Beitrag der Li⁺-Ionen vernachlässigt [146, 294, 326]. Klein und Cole [327] haben aber gezeigt, dass die Potentiale beider Target-Ionen berücksichtigt werden müssen, um die Energieabhängigkeit der Regenbogenwinkel bei Streuung von Ne- und Ar-Atomen an LiF(001) zu erklären. In Abb. 5.29 werden die in der Literatur zu findenden He-F-Paarpotentiale verglichen. Es gibt bisher nur ein experimentelles Ergebnis aus der Messung der Beweglichkeit von F⁻-Ionen in He-Gas [325] (gelbe Rauten). Das von Gärtner berechnete He-F⁻-HF-Potential (offene Kreise) ist kaum stärker, da die vernachlässigten anziehenden Beiträge hier weniger effektiv sind als bei He-Li⁺. Das neutrale He-F⁰-HF-Potential ist etwas schwächer als das ionische Potential, es wird im relevanten Bereich $V(r) < 1$ eV von ZBL- (grüne Strich-Punkt-Kurve) und OCB-Potential (lila gepunktet) deutlich überschätzt. Mit den Potentialen für neutrale Atome lassen sich weder die Beugungsmuster noch die klassischen Regenbögen bei Streuung von Atomen an LiF(001) beschreiben. Darauf wird in Abschn. 5.1.10 nochmals eingegangen. Das Potential von Ahlrichs *et al.* nach Gl. (2.15) mit den korrigierten Parametern aus dem Erratum [282] (blaue Strich-Punkt-Punkt-Kurve) stimmt deutlich besser mit den Ab-initio-Potentialen überein, als bei Verwendung der in Ref. [63] angegebenen Parameter (grau gestrichelte Kurve). Mit den von Celli *et al.* [281] verwendeten Parametern sind die Abweichung noch größer (orange gepunktete Kurve). Das aktuellste Ab-initio-Potential von Gray *et al.* [284] (grüne Dreiecke) stimmt gut mit dem experimentellen Potential überein⁶. Daher wurde es als für He-F⁻ repräsentatives Potential bei der Superposition der Paarpotentiale verwendet. Die Parameter für die an die berechneten Punkte angepasste analytische Funktion nach Gl. (2.14) sind sowohl für die Ab-initio-Potentiale, als auch für die von Gärtner [54, 55] berechneten HF-Potentiale in Tab. 5.2 aufgeführt.

Bei der Superposition von Paarpotentialen mit Anziehung werden

⁶Man beachte die Vertauschung von Å und a.u. in dem zu Ref. [284] gehörenden online verfügbaren Datensatz.

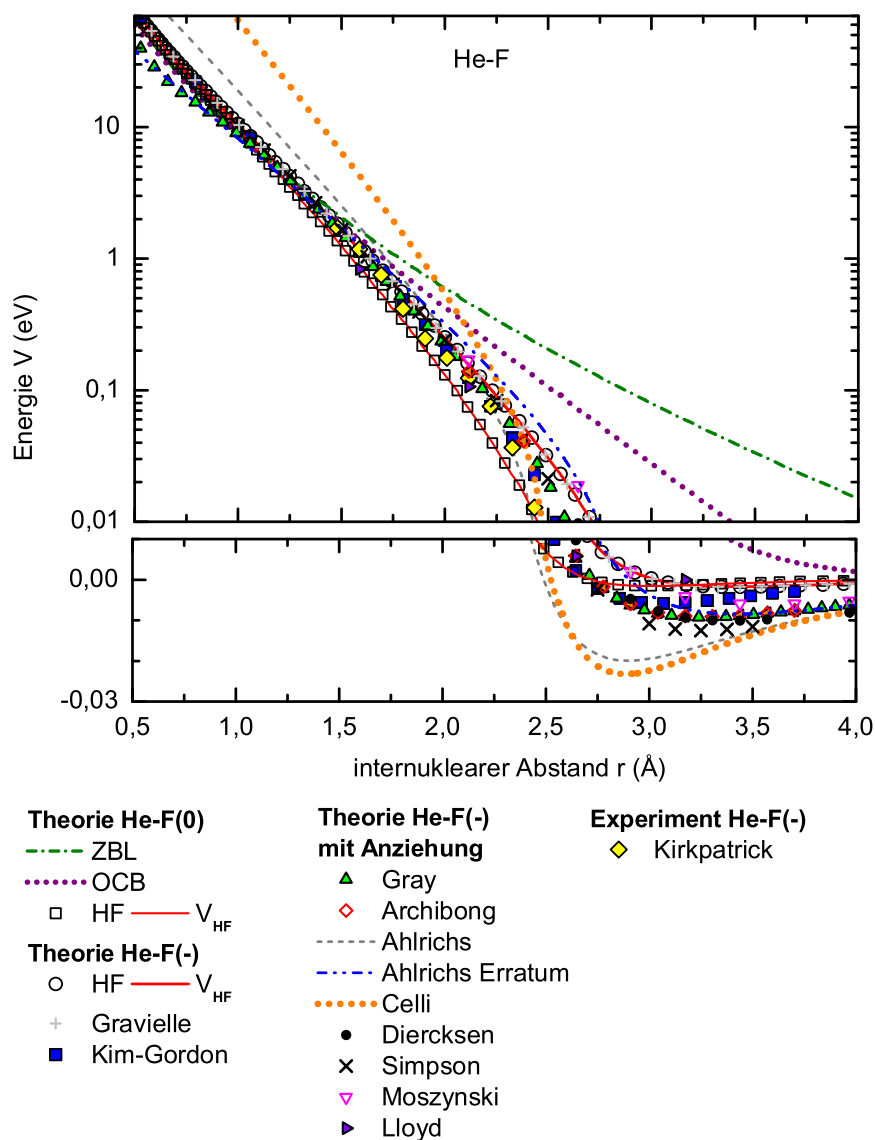


Abb. 5.29: He-F-Potentiale. ZBL [57], OCB [49], individuelles HF-Potential von Gärtner [54] für neutrales F^0 und ionisches F^- mit jeweils Anpassung einer analytischen Funktion V_{HF} nach Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 5.2, statischer Teil des Potentials von Gravielle [300], Kim-Gordon-Potential [303] sowie theoretische Potentiale von Gray [284], Archibong [321], Ahlrichs [63], Ahlrichs Erratum [282], Ahlrichs mit den Parametern von Celli [63, 281], Dierksen [322], Simpson [323], Moszynski [324] und Lloyd [311], sowie dem experimentell ermittelten Potential von Kirkpatrick [325]. Kurven/ Symbole sind analytisch/ tabellarisch gegeben.

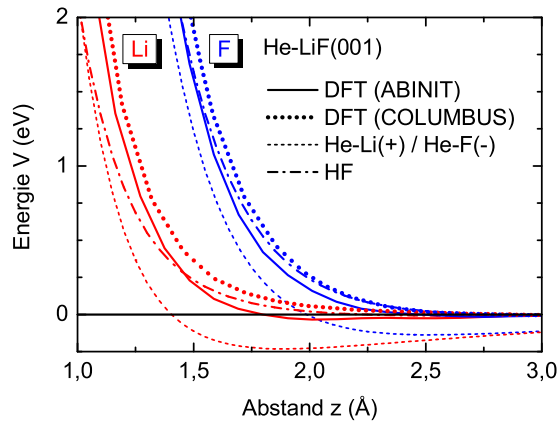


Abb. 5.30: He-LiF(001)-Potential an der Position des F^- - (rot) und des Li^+ -Ions (blau). Durchgezogene/ gepunktete Kurven: DFT-Potential aus der Rechnung von Wirtz [280] mit dem Programm ABINIT bzw. COLUMBUS. Gestrichelte/ Strich-Punkt-Kurven: Potential aus He- Li^+ - [283] und He- F^- -Potentialen [284] mit Anziehung bzw. aus HF-Paarpotentialen [54, 55] (Tab. 5.2).

die Effekte durch die Polarisierung des He-Atoms mehrfach berücksichtigt, sodass das Gesamtpotential einen zu attraktiven Bereich aufweist. In Abb. 5.30 ist das auf dem He- Li^+ -Potential von Larsen *et al.* [283] und dem He- F^- -Potential von Gray *et al.* [284] basierende He-LiF(001)-Potential an der Position x, y des Li^+ -Ions und des F^- -Ions als Funktion des Abstands z zur Oberfläche als rot bzw. blau gestrichelte Kurve dargestellt. Selbst bei $z = 3 \text{ Å}$ ist das Potential noch anziehend mit $V < -0,1 \text{ eV}$. Die auslaufenden Trajektorien werden daher in der Simulation – im Gegensatz zur experimentellen Beobachtung – zur Oberfläche hin ablenkt. Dieser Effekt kann zwar vermieden werden, indem nur das Potential bis $V(x, z) \geq 0$ berücksichtigt wird, dennoch können die Beugungsmuster so nicht reproduziert werden. In Abb. 5.26 ist die Korrugation des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentials aus der Superposition der Paarpotentiale mit Anziehung dargestellt (dünne grüne Kurve mit offenen Rauten). Sie steigt mit sinkender Energie, im Widerspruch zu den experimentellen Befunden. Vernachlässigt man bei der axialen Mittlung den attraktiven Bereich des interatomaren Potentials $V(r) < 0$, indem man das Integral in Gl. (2.25) von 0 bis r_0 numerisch berechnet, wobei $V(r_0) = 0$, dann ergibt sich ein effektives Potential, dessen Korrugation Δz noch stärker von den experimentellen Daten abweicht (dünne grüne Kurve mit Sternen). Die anziehenden Kräfte müssen also bereits bei der Berechnung des Paarpotentials ausgenommen werden.

Die Superposition von HF-Potentialen, bei denen keine anziehenden Beiträge durch Van-der-Waals-Kräfte und die Polarisierung des He-Atoms berücksichtigt sind, ergibt ein He-LiF(001)-Potential fast ohne Anziehung. Zum Vergleich ist das Potential über dem Li- bzw. F-Atom in Abb. 5.30 als Strich-Punkt-Kurve eingezeichnet. Die Korrugation des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentials ist in

Abb. 5.26 als orange gestrichelte Kurve dargestellt. Hier sinkt Δz mit sinkender Energie, da ohne einen negativen Bereich des Potentials die Korrugation gegen $\Delta z(V=0)=0$ laufen muss. Die experimentell beobachtete fast konstante Korrugation in $\langle 110 \rangle$ -Richtung resultiert aus dem Zusammenwirken des schwächeren He-Li⁺- und des stärkeren He-F⁻-Potentials. Bei geringeren Abständen liefert das Potential der Li-Atomkette einen größeren Beitrag zum Gesamtpotential und kompensiert auf diese Weise die mit sinkendem Abstand steigende Korrugation, die ein Gitter aus F⁻-Ionen ohne Li⁺-Ionen hätte [327]. Die konstante Korrugation kann sich aber nur dann bis $V(x, z)=0$ fortsetzen, wenn das effektive Potential über der Li-Kette ein negatives Minimum aufweist. Daher darf der anziehende Anteil des Potentials nicht vernachlässigt werden.

Der Beitrag der Wechselwirkung der Ionen der Oberfläche mit dem induzierten Dipol des He-Projektils zum He-LiF(001)-Potential muss bei der Superposition der Paarpotentiale zusätzlich berücksichtigt werden [281, 291, 292, 294, 328]. Gravielle *et al.* haben gezeigt, dass dieser Beitrag die Beugungsmuster bei Streuung schneller He-Atome an LiF(001) ändern kann [300, 301]. Die von diesen Autoren für den „statischen“ Anteil des He-LiF(001)-Potentials verwendeten He-Li⁺- und He-F⁻-Potentiale stimmen exakt mit den jeweiligen HF-Potentialen von Gärtner überein. Die Überlagerung des induzierten Potentials V_{id} nach Gl. (5.10) mit dem aus HF-Potentialen aufgebauten Potential ergab jedoch kein zur Beschreibung der Beugungsmuster geeignetes Potential. Im folgenden Abschnitt werden He-LiF(001)-DFT-Potentiale betrachtet, welche die Polarisierung des He-Atoms intrinsisch berücksichtigen.

Wie Gravielle *et al.* gezeigt haben, hat bei Streuung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung der Beitrag der Polarisierung zum Gesamtpotential keinen Effekt auf die Beugungsmuster [300, 301]. Daher ist hier die Superposition von HF-Potentialen eine gute Näherung. Es entspricht dem Celli-Potential ohne V_{id} aber dafür mit im eV-Bereich Bereich adäquaten Paarpotentialen. In Abb. 5.31 ist die Intensität der Beugungsordnung $n=0$ für die Streuung von ³He-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung aus der semiklassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des axial gemittelten Potentials aus der Superposition von HF-Paarpotentialen dargestellt (blaue Rauten). Die Positionen der Minima bei $k_{\perp} \approx 24 \text{ \AA}^{-1}$ und 39 \AA^{-1} sowie des Maximums bei $k_{\perp} \approx 31 \text{ \AA}^{-1}$ stimmen gut mit der experimentell beobachteten Intensitätsmodulation überein (graue Kreise). Wie in Abschn. 2.3.7 diskutiert, weicht das Ergebnis in Harte-Wand-Näherung, d.h. ohne Berücksichtigung der Variation der Wellenzahl k davon ab, wenn die Korrugation $\Delta z(V=E_{\perp})$ nicht konstant ist. Die roten Dreiecke in Abb. 5.31 repräsentieren die In-

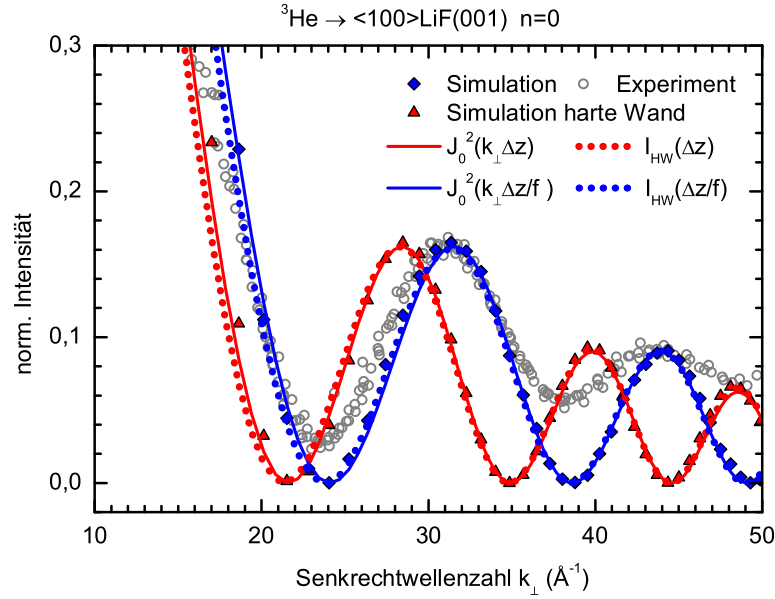


Abb. 5.31: Relative Intensität von $n=0$ für Beugung von ^3He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Graue Kreise: Experiment (vergl. Abb. 5.21). Blaue Rauten: Ergebnis der semiklassischen Simulation auf Basis der von Gärtner [54, 55] berechneten He-Li^+ - und He-F^- -HF-Potentiale. Rote Dreiecke: Gleiche Simulation, jedoch in Harte-Wand-Näherung, d.h. ohne Berücksichtigung der Variation von k . Gepunktete Kurven: analytische Lösung für die harte Wand I_{HW} nach Gl. (2.75) ohne (rot) und mit (blau) Korrektur der Abweichung aufgrund der Harte-Wand-Näherung mit $f=1,2$. Durchgezogene Kurven: analytische Lösung mit J_0^2 nach Gl. (2.78) ohne (rot) und mit Korrekturfaktor (blau). Für die analytischen Lösungen wurde die Korrugation $\Delta z(V)$ des in der Simulation verwendeten Potentials eingesetzt.

tensität aus der gleichen Simulation jedoch in Harte-Wand-Näherung, d.h. mit $k = \text{konst} = \sqrt{2ME_\perp}/\hbar$. Sie stimmt sowohl mit der Intensität aus der analytischen Lösung in Harte-Wand-Näherung mit J_0^2 nach Gl. (2.78) als auch nach Gl. (2.75) I_{HW} überein, wenn die Korrugation $\Delta z(V)$ des in der Simulation verwendeten Potentials eingesetzt wird (durchgezogene bzw. gepunktete rote Kurve). Im Vergleich mit dem Ergebnis aus der Simulation für das „weiche“ Potential ist eine Verschiebung hin zu kleineren k_\perp erkennbar. Nach Skalierung der in Gl. (2.78) bzw. Gl. (2.75) verwendeten Korrugation mit $\Delta z_{\text{HWN}} = \Delta z/f$ mit $f=1,2$ zeigt sich hingegen eine gute Übereinstimmung mit der Intensität für das „weiche“ Potential (durchgezogene bzw. gepunktete blaue Kurve). Die Anpassung von Gl. (2.78) an die Intensitätsmodulation der Beugungsordnungen $n=0$ und $n=1$ in Abb. 5.21 ergibt also eine um den Faktor f zu geringe Korrugation, sodass $\Delta z = f\Delta z_{\text{HWN}}$, mit Δz_{HWN} aus Gl. (5.4).

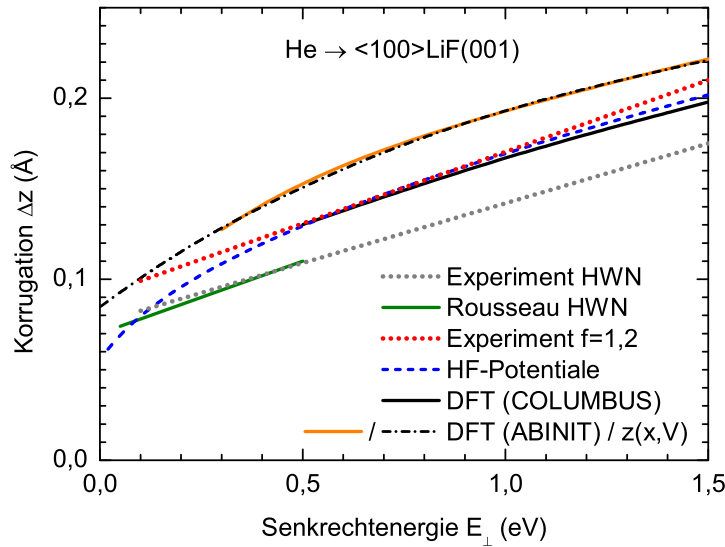


Abb. 5.32: Korrugation Δz des effektiven He-LiF(001)-Potentials für Streuung entlang $\langle 100 \rangle$ -Richtung als Funktion von E_{\perp} . Gepunktete Geraden: Gl. (5.4) aus der Anpassung der Modulation der Intensität von $n=0$ und $n=1$ (Abb. 5.21) ohne (grau) und mit (rot) Korrektur der Abweichung durch die Harte-Wand-Näherung $f=1,2$ aus der in Abb. 5.31 gezeigten Abschätzung. Grüne Gerade: experimentelles Ergebnis von Rousseau *et al.* [26] in Harte-Wand-Näherung. Blau gestrichelte Kurve: Superposition von He-Li⁺- und He-F⁻-HF-Paarpotentialen von Gärtner [54, 55]. Durchgezogene schwarze/ orange Kurve: mit dem Programm COLUMBUS [205] bzw. ABINIT [280] berechnetes He-LiF(001)-DFT-Potential. Strich-Punkt-Kurve: Aus der analytischen Beschreibung der Äquipotentialflächen $z(x, V)$ nach Gl. (5.12) mit Gl. (5.13).

In Abb. 5.32 wird die experimentell bestimmte Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ des effektiven Wechselwirkungspotentials für Streuung von He-Atomen entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung ohne (graue gepunktete Gerade) und mit (rote gepunktete Gerade) der Korrektur $f=1,2$ mit der Korrugation des axial gemittelten He-LiF(001)-Potentials aus der Superposition von He-Li⁺- und He-F⁻-HF-Potentialen verglichen (blau gestrichelte Kurve). Mit der Korrektur ist die Übereinstimmung besser. Das Ergebnis von Rousseau *et al.* [26] (grüne Gerade) stammt ebenfalls aus einer Analyse in Harte-Wand-Näherung und stimmt daher mit dem Ergebnis ohne Korrektur überein.

Für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung ist die Korrugation näherungsweise konstant, daher ist hier $f \approx 1$ und in Gl. (5.5) $\Delta z_{\text{HWN}} = \Delta z$. Dies zeigt sich auch im Vergleich der Ergebnisse der semiklassischen Rechnung in Harte-Wand-Näherung mit der Wellenpaket-Rechnung im folgenden Abschnitt.

Zusammenfassung: Die Superposition von Paarpotentialen, die auch Anziehung berücksichtigen, ergibt ein Gesamtpotential, welches die anziehenden Kräfte überschätzt. Ein Potential aus HF-Paarpotentialen, bei denen keine anziehenden Beiträge durch Polarisation oder Van-der-Waals-Kräfte berücksichtigt sind, ist ein besseres Modell. Für die Streuung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung muss zusätzlich der Beitrag der Polarisation durch die Ionen der Oberfläche berücksichtigt werden. Bei Streuung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung hat dieser Beitrag keinen Effekt auf die Beugungsmuster. Die Superposition von HF-Paarpotentialen ist für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung eine gute Näherung. Für dieses Potential ergibt sich der Korrekturfaktor für die Abweichung aufgrund der Harte-Wand-Näherung zu $f = 1,2$.

5.1.5.3 DFT-Potentiale

Das He-LiF(001)-Potential $V(x, y, z)$ wurde von Pruneda [277] mittels DFT mit dem Programm SIESTA [329] berechnet. Dazu wurde die Änderung der Gesamtenergie des Systems mit dem Abstand z des He-Atoms zur obersten Lage der LiF(001)-Oberfläche an neun hoch-symmetrischen aber symmetrisch nicht äquivalenten Positionen (x, y) bestimmt. Die Positionen der Atome der LiF(001)-Oberfläche wurden zuvor ebenfalls mittels DFT bestimmt, sodass das Rumpling ($\delta z = 0,049 \text{ \AA}$) in diesem Potential berücksichtigt ist. Zur Bestimmung der Korrugation des effektiven Potentials für Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung wurde die Energie $V(z)$ an den Positionen über der Li^+ -Kette bzw. über der F^- -Kette entlang der Kette (entlang y) gemittelt. Die Korrugation $\Delta z(V)$ der Äquipotentialflächen des axial gemittelten Potentials ergibt sich dann aus der numerischen Lösung der Gleichung $V_{\text{F}}(z) = V_{\text{Li}}(z - \Delta z)$. Die so ermittelte Korrugation $\Delta z(V)$ ist in Abb. 5.26 als Funktion der korrespondierenden Senkrechterenergie $V = E_{\perp}$ als rote durchgezogene Kurve dargestellt. Sie ist näherungsweise konstant mit $\Delta z \approx 0,335 \text{ \AA}$ und zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Werten.

Setzt man die effektive Korrugation des He-LiF(001)-Potentials von Pruneda Δz als Funktion von $\lambda_{\text{dB}\perp}$ für ^3He in Gl. (2.78) ein und verwendet dieselbe Dämpfungsfunktion wie aus der Anpassung von Gl. (2.78) (gestrichelte Kurven in Abb. 5.23), dann lässt sich die Modulation der relativen Intensität der Beugungsordnungen $n = 0$ und $n = 1$ sehr gut beschreiben (durchgezogene Kurven in Abb. 5.23).

Dass die Korrugation der Äquipotentialflächen nur gering von der korrespondierenden Energie abhängt, ergibt sich bereits aus dem Vergleich zwischen den experimentellen Daten für ^3He und ^4He . Abb. 5.33a zeigt die Intensitätsmodulation der Beugungsordnung $n = 0$ für Streu-

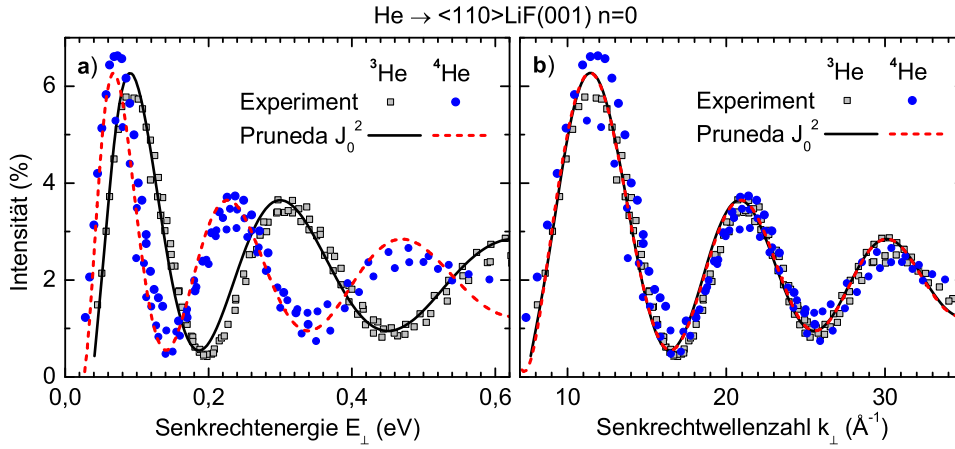


Abb. 5.33: **a)** Intensität der Beugungsordnung $n=0$ für Streuung von ^3He - (graue Quadrate) und ^4He -Atomen (blaue Kreise) an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} . Die Kurven repräsentieren die berechnete Intensität in Harte-Wand-Näherung I_0 nach Gl. (2.78) für ^3He (durchgezogene Kurve) und ^4He (rote gestrichelte Kurve) für die Korrugation $\Delta z(V = E_{\perp})$ des axial gemittelten He-LiF(001)-DFT-Potentials von Pruneda [261, 277] mit Dämpfungsfunktion (siehe Text). **b)** zeigt die selben Daten wie a) jedoch als Funktion der Senkrecht-Wellenzahl $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$.

ung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung wie in Abb. 5.23, jedoch als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} (blaue Punkte) im Vergleich zu den Daten aus der Streuung von ^4He -Atomen (graue Quadrate). Bei gleichem E_{\perp} proben ^3He und ^4He die gleiche Äquipotentialfläche. Aufgrund der unterschiedlichen Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ unterscheidet sich jedoch die Phasenbeziehung zwischen den interferierenden Trajektorien direkt über der Li-Kette und der F-Kette, welche die Intensität der Beugungsordnung $n=0$ bestimmen. Daher ist in Abb. 5.33a die Kurve für ^3He gegenüber der für ^4He gestaucht. Bei gleichem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ hingegen unterscheidet sich E_{\perp} . Damit unterscheiden sich auch die entsprechenden Äquipotentialflächen, die von den ^4He - und den ^3He -Atomen erreicht werden. Nur wenn diese beiden Äquipotentialflächen die gleiche Korrugation aufweisen, ergibt sich auch die gleiche Phasenbeziehung. Da sich – wie in Abb. 5.33b zu sehen – die relativen Intensitäten von $n=0$ als Funktion von $\lambda_{\text{dB}\perp}$ für ^4He und ^3He nicht unterscheiden, kann der Unterschied zwischen den Korrugationen der entsprechenden Äquipotentialflächen nicht groß sein, d.h. $\Delta z(V) \approx \text{konst.}$ Auch die theoretische Intensität I_0 nach Gl. (2.78) mit der effektiven Korrugation Δz des Potentials von Pruneda zeigt als Funktion von k_{\perp} für ^3He dieselbe Kurvenform wie für ^4He , während sie sich als Funktion von E_{\perp} unterscheidet (schwarze bzw. rote gestrichelte

Kurven in Abb. 5.33).

Aigner *et al.* [278, 279] haben ein He-LiF(001)-DFT-Potential mit dem Programm COLUMBUS [330] berechnet. Dabei ergab sich für das entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelte Potential $V(x, z)$ im Bereich von 0,5 eV bis 3 eV ebenfalls eine näherungsweise konstante Korrugation von $\Delta z \approx 0,335 \text{ \AA}$ bei Berücksichtigung eines Rumplings von $\delta z = 0,053 \text{ \AA}$. Im für die Beugung relevanten Energiebereich $V < 0,5 \text{ eV}$ ist dieses Potential jedoch ungenau [205, 279]. Die Korrugation nimmt mit sinkender Energie ab (graue Quadrate in Abb. 5.26) und widerspricht damit dem experimentellen Befund. Für die Beschreibung der experimentell aufgenommenen Beugungsmuster mittels einer Wellenpaket-Rechnung haben diese Autoren daher das entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelte He-LiF(001)-Potential hin zu niedrigen Energien derart extrapoliert, dass Δz näherungsweise konstant bleibt und die Rechnung mit den experimentellen Daten übereinstimmt (siehe Ref. 17 in [279]). Daher ist dieses Potential eher ein angepasstes als ein Ab-initio-Potential. Die Korrugation dieses „extrapolierten Potentials“ [205] ist in Abb. 5.26 als grüne durchgezogene Kurve dargestellt. Sie weicht kaum von der für die Korrugation des Potentials von Pruneda ab. Bei Mittelung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung ergibt sich die in Abb. 5.32 als schwarze durchgezogene Kurve gezeigte Korrugation. Sie stimmt mit der Korrugation $\Delta z(V)$ des Potentials aus der Superposition von HF-Paarpotentialen überein (blau gestrichelte Kurve) und weicht nur wenig von der experimentell bestimmten Funktion (rote gepunktete Gerade) ab.

Um den Einfluss des Rumplings δz auf das Potential und damit auf die Beugungsmuster genauer untersuchen zu können, wurde von Wirtz [280] das He-LiF(001)-DFT-Potential mit dem Programm ABINIT [65] für elf verschiedene Rumpling-Werte im Bereich $0 < \delta z < 0,2 \text{ a.u.}$ berechnet. Hier wurde die Gesamtenergie des Systems des He-Atoms vor der LiF(001)-Oberfläche an 28 hoch-symmetrischen Positionen (x, y) bei 32 äquidistanten Abständen von der obersten Lage der Oberfläche im Bereich von $z = 0,8 \text{ a.u.}$ bis $z = 7 \text{ a.u.}$ berechnet. Aus der Änderung der Gesamtenergie ergibt sich dann die potentielle Energie V an 28×32 Positionen. Um eine Wellenpaket-Rechnung durchführen zu können, wird jedoch das axial gemittelte Potential in analytischer Form benötigt. Dafür wurde zwischen den 32 z -Stützstellen stückweise polynomisch interpoliert, sodass die Funktionen $V_{x,y}(z)$ die jeweiligen berechneten Werte exakt treffen. Die Positionen (x, y) liegen jeweils auf sieben zur $\langle 110 \rangle$ - bzw. $\langle 100 \rangle$ -Richtung parallelen Geraden. Das entlang dieser Geraden gemittelte Potential für $\delta z = 0,1 \text{ a.u.}$ ist in Abb. 5.34 dargestellt. Dabei bilden die berechneten Punkte glei-

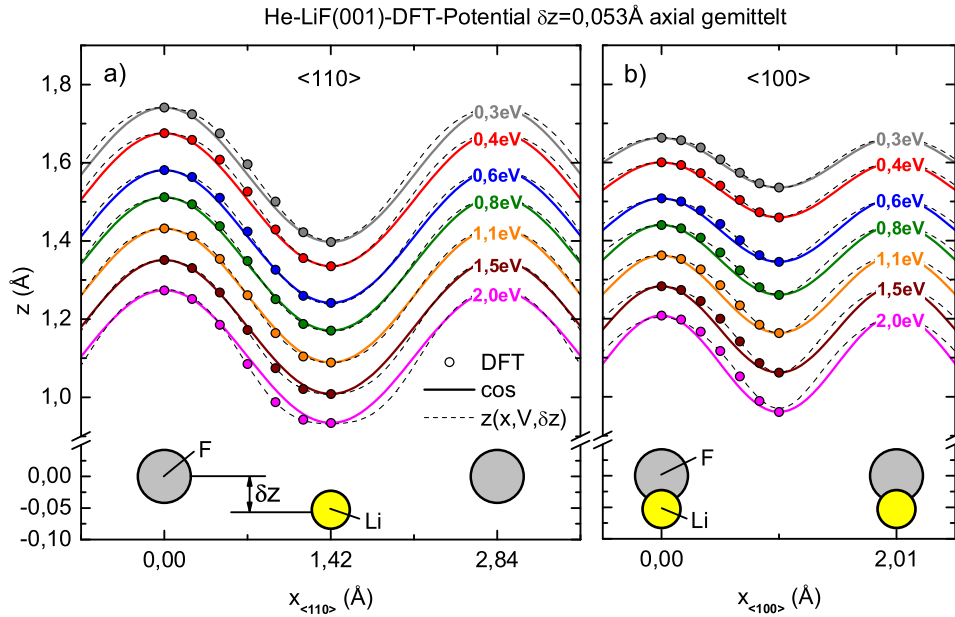


Abb. 5.34: Äquipotentialflächen $V(x, z) = \text{konst}$ des Potentials zwischen He-Atom und LiF(001)-Oberfläche bei axialer Mittlung entlang a) der $\langle 110 \rangle$ - und b) der $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Kreise: Ergebnisse der DFT-Rechnung von Wirtz [280] unter Berücksichtigung eines Rumlings von $\delta z = 0,053 \text{ \AA}$. Gestrichelte Kurven: an die berechneten Punkte angepasste analytische Funktion $z(x, V, \delta z)$ nach a) Gl. (5.14) bzw. b) Gl. (5.12). Durchgezogene Kurven: Kosinus-Funktionen mit jeweils gleicher Korrugation Δz wie das DFT-Potential.

cher Energie $V(x, z) = \text{konst}$ die Stützstellen der Äquipotentiallinien $z(x, V)$. Diese lassen sich sehr genau durch eine Fourier-Reihe mit nur drei Koeffizienten $\zeta_n(V)$ beschreiben:

$$z(x, V) = z_0 + \sum_{n=1}^2 A_n \exp(-V/t_n) + \sum_{n=1}^3 \frac{1}{2} \zeta_n(V) \cos(n 2\pi x/d) \quad (5.12)$$

Für das entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung gemittelte Potential wird die Abhängigkeit der Fourier-Koeffizienten ζ_n von der Energie im Bereich $0,3 \text{ eV} < V < 1,5 \text{ eV}$ sehr genau durch die Funktionen

$$\zeta_{1,2}(V) = a_{1,2} V^2 + b_{1,2} V + c_{1,2} \quad \text{und} \quad \zeta_3(V) = a_3 - b_3 c_3^V \quad (5.13)$$

wiedergegeben. Für z und x in \AA und V in eV ergeben sich dann folgende Parameter für das Potential mit $\delta z = 0,1 \text{ a.u.}$:

$A_1 = 0,3354$	$t_1 = 0,2402$	$a_1 = -0,0278$	$b_1 = 0,1227$	$c_1 = 0,0946$
$A_2 = 0,8039$	$t_2 = 1,8936$	$a_2 = 0,0075$	$b_2 = -0,0289$	$c_2 = -0,0007$
$z_0 = 0,8213$	$d = 2,01$	$a_3 = 0,00513$	$b_3 = 0,01503$	$c_3 = 0,03628$

Die sich nach Gl. (5.12) und Gl. (5.13) mit diesen Parametern ergebenden Äquipotentiallinien $z(x, V)$ sind in Abb. 5.34b als gestrichelte schwarze Kurven dargestellt.

Eine Änderung des Rumpling δz ändert die Form der Äquipotentiallinien des entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung gemittelten He-LiF(001)-Potentials kaum. Dagegen ist das entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelte Potential von δz abhängig. Alle drei Fourier-Koeffizienten in Gl. (5.12) sind hier aber nur lineare Funktionen von V , sodass

$$z(x, V) = z_0 + \sum_{n=1}^2 A_n \exp(-V/t_n) + \sum_{n=1}^3 \frac{1}{2} (a_n V + b_n) \cos(xn2\pi/d)$$

Mit dieser Formel wurden die Äquipotentiallinien der entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentiale für verschiedene Rumpling-Werte δz angepasst. Dabei zeigte sich, dass die Parameter nur linear bzw. quadratisch von δz abhängen, sodass alle elf berechneten Potentiale für $0 < \delta z < 0,2$ a.u. im relevanten Bereich $0,3 \text{ eV} < V < 2,0 \text{ eV}$ mit nur einer analytischen Funktion $z(x, V, \delta z)$ wiedergegeben werden können:

$$z(x, V, \delta z) = z_0 + z_1 \delta z + \sum_{n=1}^2 A_n \exp(-V/t_n) + \sum_{n=1}^3 \frac{1}{2} ((a_n \delta z + b_n)V + \alpha_n \delta z + \beta_n) \cos(xn2\pi/d) \quad (5.14)$$

Für z und x in Å, V in eV und δz in a.u. ergeben sich folgende Parameter:

$$\begin{aligned} A_1 &= 0,0705\delta z + 0,7613; & t_1 &= 1,768 \\ A_2 &= -0,5674\delta z^2 + 0,1224\delta z + 0,3259 \\ t_2 &= 0,4063\delta z^2 - 0,0927\delta z + 0,2306 \\ a_1 &= 0,1154 & b_1 &= -0,002 & \alpha_1 &= 0,1971 & \beta_1 &= 0,3238 \\ a_2 &= -0,0199 & b_2 &= 0,0272 & \alpha_2 &= -0,0958 & \beta_2 &= -0,0189 \\ a_3 &= -0,012 & b_3 &= -0,0061 & \alpha_3 &= 0,0279 & \beta_3 &= -0,007 \\ z_0 &= 0,8635 & z_1 &= -0,1845 & d &= 2,84 \end{aligned}$$

Die sich nach Gl. (5.14) mit diesen Parametern für $\delta z = 0,1$ a.u. ergebenden Äquipotentiallinien sind in Abb. 5.34a als gestrichelte Kurven eingezeichnet.

Im Bereich $V \lesssim 0,3 \text{ eV}$ ist das berechnete Potential nicht vertrauenswürdig. Die Korrugation des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentials mit $\delta z = 0,1$ a.u. $\approx 0,053$ Å ist in Abb. 5.26 als blaue Strich-Punkt-Kurve dargestellt. Im Gegensatz zum DFT-Potential, welches

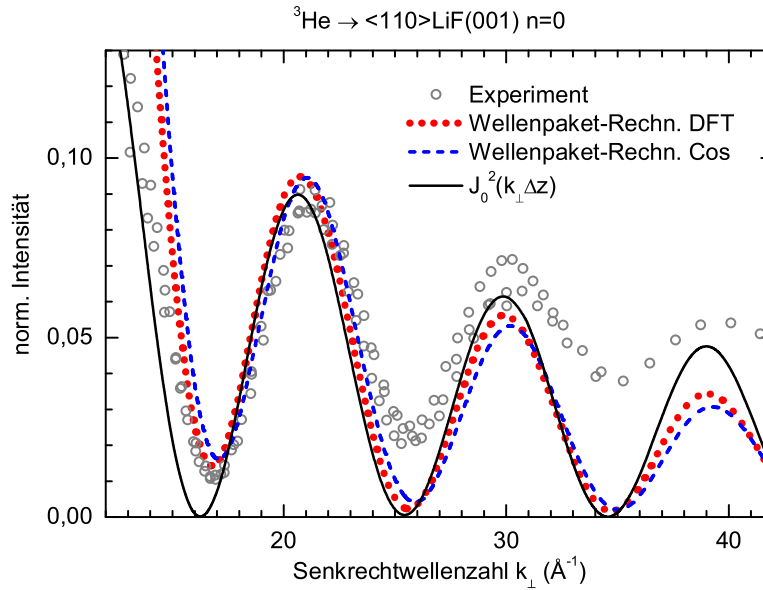


Abb. 5.35: Relative Intensität von $n=0$ für Beugung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Graue Kreise: Experiment (vergl. Abb. 5.23). Rot gepunktete/ blau gestrichelte Kurve: Ergebnis der Wellenpaket-Rechnung von Aigner [331] auf der Basis des DFT-He-LiF(001)-Potentials nach Gl. (5.14) mit Rumpeling $\delta z = 0,1 \text{ a.u.}$ bzw. dessen Näherung durch Kosinus-Funktionen nach Gl. (5.15). Durchgezogene schwarze Kurve: Analytische Lösung für die harte sinusförmige Wand nach Gl. (2.78) $J_0^2(k_\perp \Delta z)$ mit der Korrigation $\Delta z(V)$ des in der Simulation verwendeten Potentials.

mit dem Programm COLUMBUS berechnet wurde (graue Quadrate), steigt Δz in diesem Bereich mit sinkender Energie. Dies resultiert aus einer unterschiedlichen Beschreibung der anziehenden Kräfte. In Abb. 5.30 werden die beiden DFT-Potentiale an der Li-Position (rot) bzw. F-Position (blau) miteinander verglichen [280]. Das mit ABINIT berechnete DFT-Potential (durchgezogene Kurve) ist schwächer und zeigt im Gegensatz zum mit COLUMBUS berechneten DFT-Potential (gepunktete Kurven) über der Li-Position ein anziehendes Minimum. Die Unterschiede zwischen dem aus HF-Paarpotentialen aufgebauten He-LiF(001)-Potential (Strich-Punkt-Kurve) und den DFT-Potentialen sind nicht größer als die Unterschiede zwischen den beiden DFT-Potentialen untereinander. Das schwächere mit ABINIT berechnete DFT-Potential weist bei Mittlung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung eine größere als die experimentell beobachtete Korrigation auf (orange durchgezogene Kurve in Abb. 5.32). Die schwarze Strich-Punkt-Kurve in Abb. 5.32 repräsentiert die Korrigation aus der analytischen Beschreibung der Äquipotentialflächen $z(x, V)$ nach Gl. (5.12) und (5.13).

Die Äquipotentialflächen des entlang der $\langle 110 \rangle$ - und $\langle 100 \rangle$ -Richtung

gemittelten He-LiF(001)-Potentials können im für die Beugung relevanten Energiebereich $V < 1,5$ eV in erster Näherung auch durch einfache Kosinus-Funktionen beschrieben werden. Die durchgezogenen Kurven in Abb. 5.34 sind Kosinus-Funktionen mit jeweils gleicher Korrugation $\Delta z(V)$ wie die des axial gemittelten DFT-Potentials. Erst ab $V > 1,5$ eV werden die Abweichungen zunehmend stärker. Für das entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelte DFT-Potential mit Rumppling $\delta z = 0,1$ a.u. können die Äquipotentialflächen im Bereich $0,3 \text{ eV} < V < 1,5 \text{ eV}$ mit

$$z(x, V) = \frac{1}{2} \Delta z(V) (\cos(2\pi x/d) - 1) + z_F(V) \quad (5.15)$$

approximiert werden, wobei sich die Korrugation $\Delta z(V)$ durch eine lineare Funktion $\Delta z(V) = aV + b$ und die Position der Äquipotentialflächen senkrecht über der F-Kette durch $z_F(V) = z_0 + \sum_{n=1}^2 A_n \exp(-V/t_n)$ nähern lässt. Für z und x in Å und V in eV ergeben sich folgende Parameter:

$$\begin{array}{llll} a = 0,0053 & A_1 = 0,36597 & t_1 = -0,15737 & z_0 = 1,10191 \\ b = -0,3368 & A_2 = -0,72246 & t_2 = 1,40347 & d = 2,84 \end{array}$$

In Abb. 5.35 werden die Intensitäten aus der Wellenpaket-Rechnung von Aigner [331] auf Basis des DFT-Potentials nach Gl. (5.14) mit $\delta z = 0,1$ a.u. (rot gepunktete Kurve) und auf Basis der Näherung des DFT-Potentials mit nur einer Kosinus-Funktion nach Gl. (5.15) (blau gestrichelte Kurve) miteinander verglichen⁷. Die beiden Kurven unterscheiden sich kaum⁸. Die Positionen der Minima bei $k_{\perp} \approx 17 \text{ Å}^{-1}$ und 26 Å^{-1} sowie die Maxima bei $k_{\perp} \approx 21 \text{ Å}^{-1}$ und 30 Å^{-1} stimmen gut mit der experimentell beobachteten Intensitätsmodulation überein (graue Kreise). Die Verwendung eines sinusförmigen Potentials bei der semiklassischen Analyse der Beugungsmuster ist daher eine gute Näherung. Das Potential nach Gl. (5.14) und die Näherung mit nur einer Kosinus-Funktion nach Gl. (5.15) haben die gleiche Korrugation $\Delta z(V)$. Wird diese Funktion in der semiklassischen Näherung für Beugung an einer sinusförmigen harten Wand nach Gl. (2.78) in $J_0^2(k_{\perp} \Delta z)$ eingesetzt, dann ergibt sich die als schwarze durchgezogene Kurve in Abb. 5.35 dargestellte Intensitätsmodulation. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit der exakten Wellenpaket-Rechnung. Die Abweichungen aufgrund der Harte-Wand-Näherung sind also vernachlässigbar.

⁷Dekohärenzeffekte, welche in der Wellenpaket-Rechnung durch „kicks“ [278, 279] implementiert werden, sind hier nicht berücksichtigt.

⁸Für höhere Beugungsordnungen n werden die Unterschiede in der Umgebung des Regenbogens, d.h. beim ersten auftretenden Maximum $m = 0$ deutlicher.

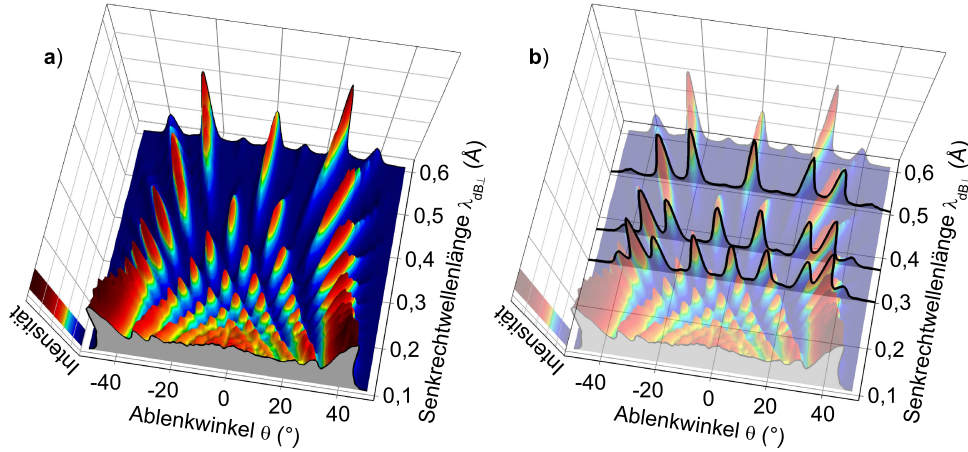
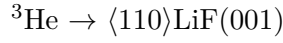


Abb. 5.36: **a)** Dreidimensionale Darstellung der projizierten gemessenen Intensitätsverteilungen als Funktion des Ablenkwinkels θ und der De-Broglie-Wellenlänge bezüglich der Bewegung senkrecht zur Oberfläche $\lambda_{\text{dB}\perp}$ bei Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an LiF(001) entlang $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Die selben Daten werden unten in Abb. 5.37 als zweidimensionale Beugungskarte gezeigt. In **b)** sind zur Veranschaulichung in die gleiche Darstellung wie in **a)** die drei Intensitätsverteilungen aus Abb. 5.24a, c und e als schwarze Kurve eingezeichnet.

Zusammenfassung: Alle drei mit verschiedenen Programmen berechneten He-LiF(001)-DFT-Potentiale unterscheiden sich bei kleinen Energien. Die Beschreibung der Äquipotentialflächen des axial gemittelten DFT-Potentials durch Kosinus-Funktionen ist eine gute Näherung.

5.1.6 Beugungskarten

Da die Ablenkwinkel θ_n und die relative Höhen der Beugungsmaxima bei gegebener Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} sind (Abb. 5.20b), können die projizierten Intensitätsverteilungen für unterschiedliche Φ_{in} bei verschiedenen Projektilenergien E_0 in einem gemeinsamen Diagramm als Funktion von θ und $\lambda_{\text{dB}\perp}$ dargestellt werden. Das in Abb. 5.36a gezeigte Diagramm besteht aus 53 projizierten Intensitätsverteilungen für die Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Zur Veranschaulichung sind in Abb. 5.36b im gleichen Diagramm die drei experimentellen Intensitätsverteilungen aus Abb. 5.24a, c und e hervorgehoben. Die Intensität jeder projizierten Intensitätsverteilung wurde dafür mit $\int I(\theta, \lambda_{\text{dB}\perp}) d\theta = 1/\lambda_{\text{dB}\perp}$ normiert. Da nach Gl. (2.75) die Einhüllende der Intensitätsmodulation der nullten Beugungsordnung $I_{n=0}(\lambda_{\text{dB}\perp})$

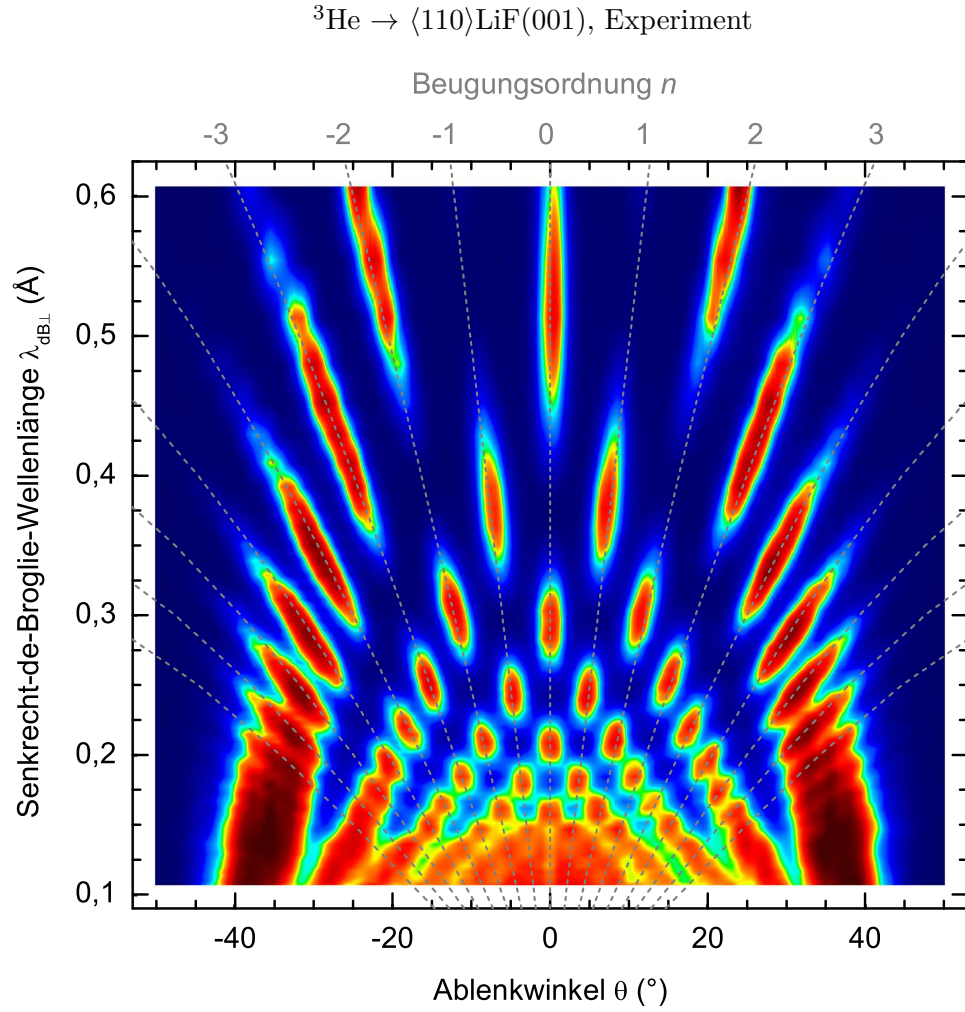


Abb. 5.37: Beugungskarte für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung bestehend aus insgesamt 53 projizierten Intensitätsverteilungen – wie in Abb. 5.24 gezeigt – als Funktion des Ablenk winkels θ und der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$. Das zu Grunde liegende 3D-Diagramm wird inklusive der Farbskala in Abb. 5.36 gezeigt. Die grauen gestrichelten Kurven markieren die theoretische Position θ_n der Bragg-Reflexe nach Gl. (2.62) für $|n| \leq 8$.

proportional zu $\lambda_{\text{dB}\perp}$ ist, haben die Maxima durch diese Normierung die gleiche Höhe und Farbkodierung. Das Diagramm kann dann als zweidimensionale „Beugungskarte“ wie in Abb. 5.37 dargestellt werden, da die Position der Maxima anhand der Farbkodierung zu erkennen ist. Die Beugungskarte repräsentiert den vollständigen experimentellen Datensatz. Da die Intensität der Bragg-Reflexe sensitiv vom Wechselwirkungspotential abhängt, ist diese Beugungskarte ein „Fingerabdruck“ des effektiven He-LiF(001)-Potentials für die Streuung von ^3He -Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Der Zusammenhang zwischen den Positionen der Maxima bzw. Minima in der Beugungskarte und den überzähligen Regenbögen m wurde bereits anhand von Abb. 2.20 auf S. 58 erläutert. Die theoretischen Positionen der Bragg-Reflexe $|n| \leq 8$ nach Gl. (2.62) sind in Abb. 5.37 als grau gestrichelte Kurve eingezeichnet, um zu markieren welche Maxima zur selben Beugungsordnung n gehören. Die Intensität entlang der Kurve für $n=0$ bzw. $n=1$ entspricht Abb. 5.23. Während die Position der Bragg-Reflexe n von der Periodizität und damit von der Breite d des Gitterführungschanals abhängt, wird die Position der Maxima m entlang der grau gestrichelten Kurven einer jeden Ordnung n durch die Form des effektiven Wechselwirkungspotentials bestimmt. Ein adäquates He-LiF(001)-Potential muss die Positionen aller Maxima und Minima dazwischen genau wiedergeben.

In Abb. 5.38 ist die zugehörige theoretische Beugungskarte aus der Lösung der Harte-Wand-Näherung mit Bessel-Funktionen nach Gl. (5.8) für die Korrugation $\Delta z(V)$ des axial gemittelten DFT-Potentials von Pruneda (rote Kurve in Abb. 5.26) dargestellt. Für die Halbwertsbreite $w_L(\lambda_{\text{dB}\perp})$ wurde die mittlere Halbwertsbreite der Beugungslinien aus der Anpassung an das Experiment verwendet. Die Normierung der Intensitätsverteilungen und die Farbskala sind dieselben wie bei der experimentellen Beugungskarte in Abb. 5.37. Die weißen Kurven repräsentieren die Position der Maxima der überzähligen Regenbögen $|m| \leq 5$ ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung aus der Bestimmung der Maxima der Bessel-Funktionen J_n durch Lösung von Gl. (2.83) mit $n \in \mathbb{R}$. Sie zeigen an, welche Maxima zur selben Ordnung m gehören (vergl. S. 174 und S. 172). Die Positionen der Maxima stimmen überein. Leichte Unterschiede in der Form der Maxima ergeben sich aus der Näherung des Profils der Beugungslinien durch Lorentz-Kurven in Gl. (5.8). An den Stellen, an denen die theoretische Position des Maximums eines überzähligen Regenbogens m mit der Position eines Bragg-Reflexes n zusammenfällt, befindet sich ein Intensitätsmaximum. Dies entspricht der analytisch berechneten Beugungskarte aus Abb. 2.20 auf S. 58, wo zur Vereinfachung eine konstante Korrugation $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$

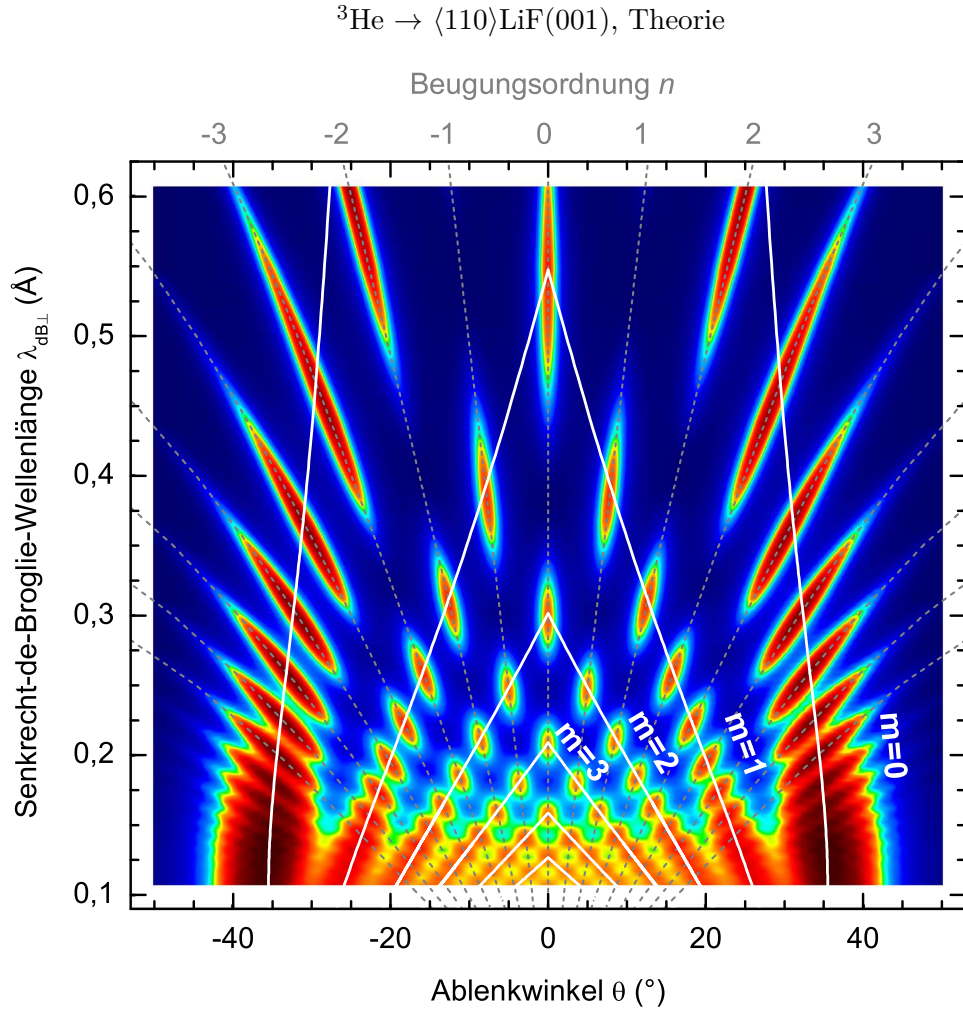


Abb. 5.38: Berechnete Beugungskarte für Streuung von ^3He -Atomen an den Atomketten der $\langle 110 \rangle$ -Richtung der $\text{LiF}(001)$ -Oberfläche in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (5.8) für die Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ des DFT-Potentials von Pruneda (rote Kurve in Abb. 5.26). Die Normierung der Intensitätsverteilungen und die Farbskala sind dieselben wie bei der experimentellen Beugungskarte in Abb. 5.37. Die grau gestrichelten Kurven markieren die theoretische Position der Bragg-Reflexe. Die weißen Kurven repräsentieren die Position der Maxima der überzähligen Regenbögen $|m| \leq 5$ ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung aus der Lösung mit Bessel-Funktionen J_n nach Gl. (2.83) mit $n \in \mathbb{R}$.

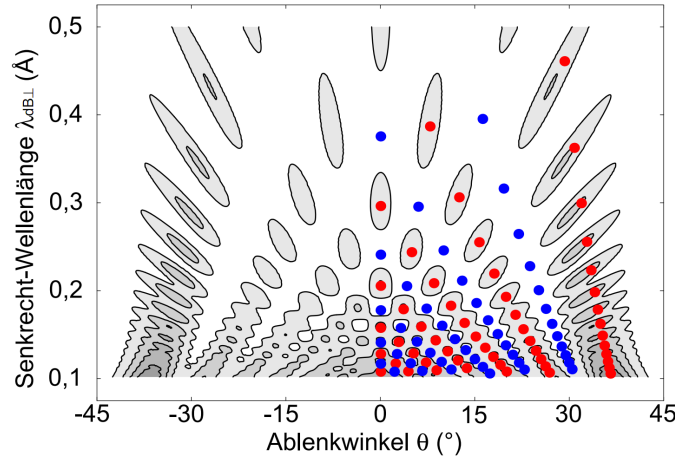


Abb. 5.39: Beugungskarte für Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung aus einer Wellenpaket-Rechnung von Simonovic [205] (dunkelgrau = hohe Intensität, weiß = geringe Intensität) auf Basis des aus dem mit COLUMBUS berechneten DFT-Potential für Streuung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung „extrapolierten“ Potentials (siehe Abschn. 5.1.5.3). Zum Vergleich sind für $\theta \geq 0$ die nach Gl. (2.84) berechneten Positionen der Maxima (rote Kreise) und Minima (blaue Kreise) für Streuung an einer sinusförmigen harten Wand mit der gleichen Periodizität $d = 2,84 \text{ \AA}$ und der gleichen Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ wie bei dem in der Wellenpaket-Rechnung verwendeten Potential eingezeichnet.

verwendet wurde. Dieser Wert ist eine gute Näherung für die fast konstante Korrugation des effektiven Potentials aus dem DFT-Potential von Pruneda. Für kleine $\lambda_{dB\perp}$ überlagern sich die Bragg-Reflexe derart, dass nur noch die Maxima und Minima der überzähligen Regenbögen m auflösbar sind. Dieses ist auch in der experimentellen Beugungskarte Abb. 5.37 gut zu erkennen. Das ist der Grund, warum in Abb. 5.2b auf S. 120 nur die überzähligen Regenbögen erkennbar sind, während bei kleinerer Projektilenergie (größerem $\lambda_{dB\perp}$) in Abb. 5.2c die Intensitätsverteilung aus diskreten Bragg-Reflexen unterschiedlicher Intensität besteht. Die überzähligen Regenbögen werden in Abschn. 5.1.8 noch im Detail diskutiert.

Die Übereinstimmung der experimentellen und der theoretischen Beugungskarte zeigt, dass das Modell einer sinusförmigen harten Wand mit der gleichen Korrugation wie die des axial gemittelten DFT-Potentials von Pruneda eine gute Näherung ist. Anhand der Intensität der Beugungsordnung $n = 0$ in Abb. 5.35 wurde bereits gezeigt, dass die Abweichungen aufgrund der Harte-Wand-Näherung für Streuung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung vernachlässigbar sind. In Abb. 5.39 ist die Beugungskarte für Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung aus einer Wellenpaket-Rechnung von Simonovic [205]

(dunkelgrau = hohe Intensität, weiß = geringe Intensität) auf Basis des aus dem mit COLUMBUS berechneten DFT-Potential „extrapolierten“ Potentials (siehe Abschn. 5.1.5.3) dargestellt. Zum Vergleich sind für $\theta \geq 0$ die nach Gl. (2.84) mit $n \in \mathbb{N}$ berechneten Positionen der Maxima (rote Kreise) und Minima (blaue Kreise) für Streuung an einer sinusförmigen harten Wand mit der gleichen Periodizität $d = 2,84 \text{ \AA}$ und der gleichen Korrugation $\Delta z(V = E_{\perp})$ wie bei dem in der Wellenpaket-Rechnung verwendeten Potential eingezeichnet. Die Positionen der Maxima und Minima stimmen überein. Lediglich bei der Position des Maximums mit dem größtem Ablenkwinkel θ zeigen sich leichte Unterschiede, die aus der Abweichung der Form der Äquipotentiallinien von einem sinusförmigen Verlauf resultieren. Sowohl die Hartewand-Näherung als auch die Näherung der Äquipotentialflächen durch Kosinus-Funktionen verursachen also kaum Abweichungen bei der Beschreibung der Beugungsmuster schneller He-Atome bei der Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung von LiF(001).

Um die Sensitivität der Beugungskarte auf das zugrunde liegende effektive Potential zu demonstrieren, wurde für Abb. 5.40 die gleiche Rechnung wie für Abb. 5.38 durchgeführt, jedoch mit einer um $0,05 \text{ \AA}$ verringerten bzw. erhöhten Korrugation $\Delta \tilde{z}$. Zum Vergleich sind in Abb. 5.40 die gleichen weißen Kurven wie in Abb. 5.38 eingezeichnet. Es zeigt sich eine deutliche Verschiebung der Maxima entlang der theoretischen Position der Bragg-Reflexe (grau gestrichelte Kurven) zu a) niedrigeren bzw. b) größeren $\lambda_{dB\perp}$. Damit z.B. die beiden Trajektorien A und B mit $\theta = 0$ beim Maximum der Äquipotentialflächen über der F-Kette bzw. beim Minimum über der Li-Kette nach der Verringerung/ Erhöhung von Δz wieder konstruktiv interferieren, muss die Senkrechwellenlänge $\lambda_{dB\perp}$ verringert/ erhöht werden. Die Maxima für $n = 0$ verschieben sich daher zu kleineren/ größeren $\lambda_{dB\perp}$. Die schwarzen Kreuze repräsentieren die Näherung der Position der Maxima von $n = 0$ durch Lösung von Gl. (2.81) für $m = 1$ bis $m = 5$. Sie stimmen mit der exakten Rechnung gut überein. Auch die Position des Quanten-Regenbogens $m = 0$ ist von Δz abhängig. Die weiß gestrichelten Kurven sind das Ergebnis der Näherung der Position von $m = 0$ durch Gl. (2.89) für $\Delta \tilde{z}$. Man beachte, dass für diese Näherungen die Bessel-Funktionen bzw. deren Nullstellen nicht gebraucht werden. Die Position der Intensitätsmaxima entlang der theoretischen Positionen der Bragg-Reflexe hängen also sensitiv von der Korrugation des effektiven Wechselwirkungspotentials ab. Die hohe Empfindlichkeit wird in Abschn. 5.1.7 ausgenutzt, um das Rumppling δz der obersten Lage der LiF(001)-Oberfläche zu bestimmen.

Wie anhand von Abb. 5.31 bereits diskutiert wurde, muss im Ge-

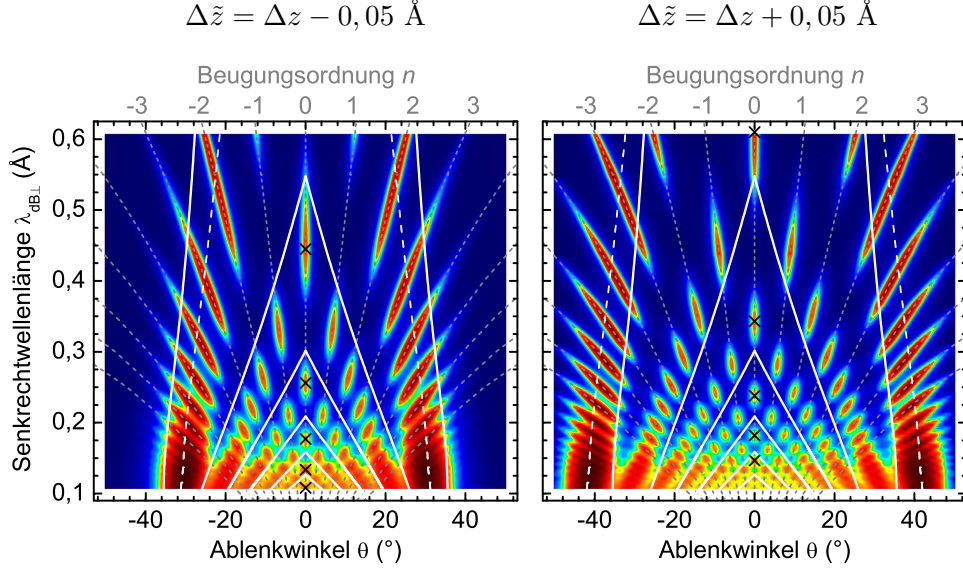
${}^3\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$, Theorie

Abb. 5.40: Berechnete Beugungskarten für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an den Atomketten der $\langle 110 \rangle$ -Richtung der LiF(001)-Oberfläche in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (5.8) für eine gegenüber der Korrugation Δz des axial gemittelten DFT-Potentials von Pruneda (rote Kurve in Abb. 5.26) um a) $-0,05 \text{ \AA}$ verringerten bzw. b) um $+0,05 \text{ \AA}$ erhöhten Korrugation $\Delta \tilde{z}$. Die weißen Kurven sind mit denen aus Abb. 5.38 identisch. Die grau gestrichelten Kurven markieren die theoretische Position der Bragg-Reflexe $|n| \leq 8$. Die schwarzen Kreuze repräsentieren die Näherung der Position der Maxima von $n=0$ durch Lösung von Gl. (2.81) für $m=1$ bis $m=5$. Die weißen gestrichelten Kurven sind das Ergebnis der Näherung der Position des Quanten-Regenbogens $m=0$ durch Gl. (2.89) für $\Delta \tilde{z}$.

gensatz zur $\langle 110 \rangle$ -Richtung bei der $\langle 100 \rangle$ -Richtung die Abweichung aufgrund der Harte-Wand-Näherung korrigiert werden. In Abb. 5.41 ist die experimentelle Beugungskarte für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung den theoretischen Beugungskarten aus der Harte-Wand-Näherung mit Korrektur, aus der semiklassischen Simulation und aus der Wellenpaket-Rechnung gegenübergestellt. Die experimentelle Beugungskarte in Abb. 5.41a besteht aus insgesamt 86 projizierten experimentellen Intensitätsverteilungen wie in Abb. 5.20b für Projektilenergien im Bereich $0,4 \text{ keV} < E_0 < 10 \text{ keV}$. Die grau gestrichelten Kurven markieren die theoretischen Positionen der Bragg-Reflexe der Ordnungen $|n| \leq 3$. Für die Streuung entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung ist der Beitrag der Polarisation zum effektiven He-LiF(001)-Potential vernachlässigbar [300, 301], die Superposition von He-Li⁺- und He-F⁻-HF-Potentialen daher eine gute Näherung. Die Beugungskarte in Abb. 5.41c ist das Ergebnis der semiklassischen Simulation auf der

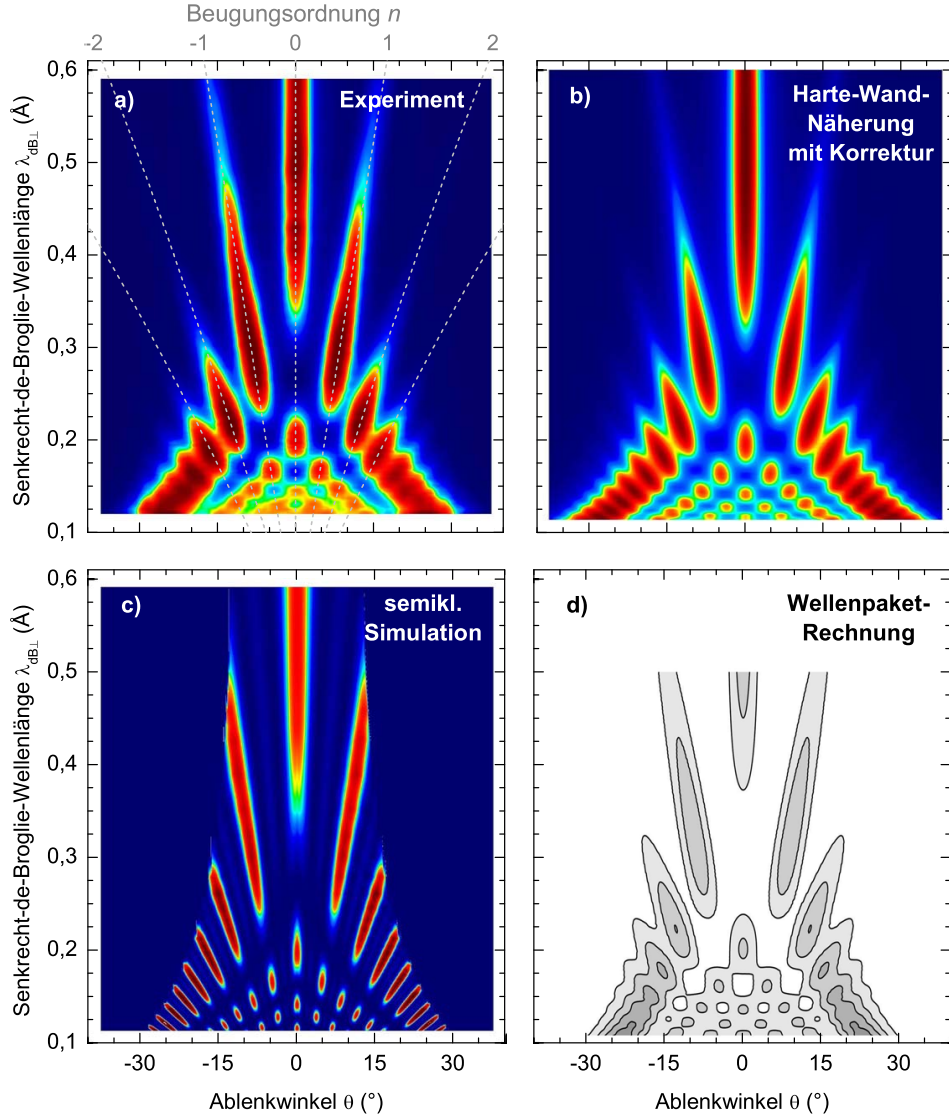
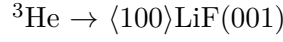


Abb. 5.41: Beugungskarten für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an den Atomketten der $\langle 100 \rangle$ -Richtung der $\text{LiF}(001)$ -Oberfläche aus **a)** 86 projizierten experimentellen Intensitätsverteilungen wie in Abb. 5.20b für Projektilenergien im Bereich $0,4 \text{ keV} < E_0 < 10 \text{ keV}$, **b)** aus der Harte-Wand-Näherung nach Gl. (5.8) mit Korrigation $\Delta z(E_\perp)$ des Potentials aus der Superposition von HF-Paarpotentialen von Gärtner [54, 55] (Abb. 5.32) mit Korrektur $f = 1,2$ (Abb. 5.31), **c)** aus der semiklassischen Simulation auf Basis der HF-Paarpotentiale sowie **d)** aus der Wellenpaket-Rechnung von Simonovic [205] auf Basis des mit COLUMBUS berechneten He-LiF(001)-DFT-Potentials. Grau gestrichelte Kurven in **a)**: theoretische Position der Bragg-Reflexe $-3 < n < 3$. Blau bzw. weiß = niedrige Intensität, rot bzw. dunkelgrau = hohe Intensität, **a)** und **b)** haben die gleiche Normierung und Farbskala.

Basis des axial gemittelten Potentials aus HF-Paarpotentialen. Dabei wurde eine Kohärenzlänge von $2d$ angenommen, d.h. es interferieren nur die Trajektorien aus drei benachbarten Gitterführungschanälen. Die normierte Intensität für $n=0$ aus dieser Simulation wurde bereits in Abb. 5.31 als blaue Rauten gezeigt. Zwar entsprechen die Positionen der Maxima $m \geq 1$ den Positionen in der experimentellen Beugungskarte, jedoch wird weder die Form noch die Breite der Beugungslinien richtig beschrieben. Außerdem gibt es in der semiklassischen Simulation keine Intensität auf der dunklen Seite des Regenbogens $\theta > \theta_{rb}$, im Gegensatz zur experimentellen Beugungskarte. Um diese Unzulänglichkeit zu beheben ist – wie in Abschn. 2.3.4.3 diskutiert – eine „uniforme“ Theorie notwendig, die auch die Intensität in der Umgebung der klassischen Singularität bei θ_{rb} korrekt beschreiben kann. Die Lösung auf Basis von Bessel-Funktionen J_n für die Beugung an einer sinusförmigen harten Wand nach Gl. (2.76) bzw. Gl. (5.8) ist eine „uniforme“ Theorie. Die in Abb. 5.41b gezeigte Beugungskarte ergibt sich nach Gl. (5.8) für die Korrugation $\Delta z(V)/f$ des in der Simulation verwendeten Potentials unter Berücksichtigung des in Abschn. 5.1.5.2 abgeschätzten Korrekturfaktors $f=1,2$. Die Halbwertsbreite der Beugungsmaxima wurde hierbei konstant auf $w_L \approx 4,5^\circ$ gesetzt, der Breite die sich aus der azimutalen Divergenz des einlaufenden Strahls ergibt. Abb. 5.41a und b haben die gleiche Normierung und Farbskala. Sowohl die Position aller Maxima, als auch die exponentiell abklingende Intensität im klassisch verbotenen Bereich $\theta > \theta_{rb}$ werden richtig beschrieben. Zum Vergleich ist in Abb. 5.41d die Beugungskarte aus der Wellenpaket-Rechnung von Simonovic [205] auf Basis des mit COLUMBUS berechneten He-LiF(001)-DFT-Potentials gezeigt (weiß = niedrige, dunkelgrau = hohe Intensität). Die Positionen der Maxima stimmen mit denen aus der semiklassischen Simulation bzw. der Lösung nach Gl. (5.8) überein, da die Korrugationen $\Delta z(V=E_\perp)$ der jeweils zugrundeliegenden axial gemittelten Potentiale übereinstimmen (blau gestrichelte bzw. durchgezogene schwarze Kurve in Abb. 5.32).

Zusammenfassung: Der jeweils in einer Beugungskarte zusammengefasste gesamte experimentelle Datensatz für die Beugung schneller He-Atome an LiF(001) bei Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ - bzw. $\langle 100 \rangle$ -Richtung lässt sich mit dem Modell einer sinusförmigen harten Wand gut beschreiben, wobei bei der $\langle 100 \rangle$ -Richtung die Unterschätzung der Korrugation durch die Harte-Wand-Näherung berücksichtigt werden muss. Die Näherung stimmt gut mit der Wellenpaket-Rechnung überein. Die Beugungskarten hängen empfindlich von der Korrugation des effektiven Wechselwirkungspotentials ab.

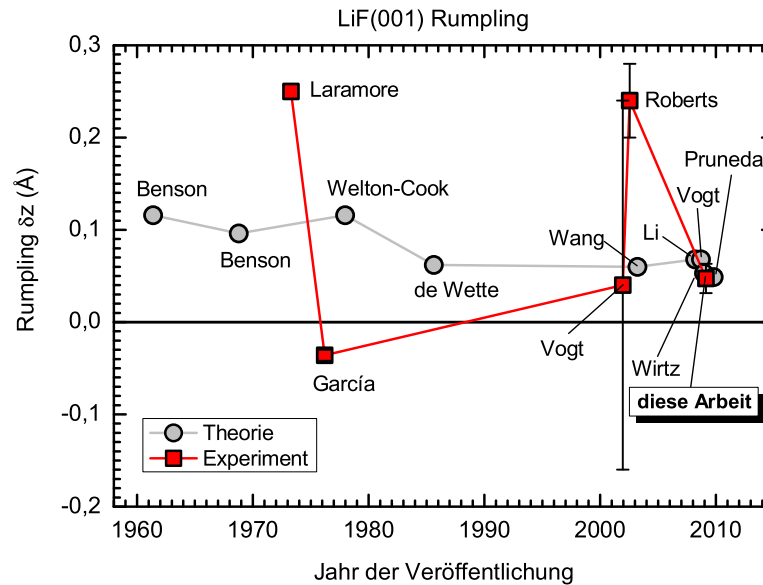


Abb. 5.42: Literaturwerte für das Rumpling δz von LiF(001). Rote Quadrate: Experimentell bestimmte Werte mittels LEED von Laramore *et al.* [267], Vogt *et al.* [268] und Roberts *et al.* [14] sowie aus den Daten für Beugung thermischer He-Atome durch Garcia [181, 187]. Graue Kreise: theoretische Werte aus Schalenmodellrechnungen von Benson [332, 335], Welton-Cook *et al.* [333] und de Wette [336] sowie aus DFT-Rechnungen von Wang *et al.* [269], Li [337], Vogt [338], Wirtz aus Ref. [279] und von Pruneda aus Ref. [261].

5.1.7 Das Rumpling von LiF(001)

Die Ionen der (001)-Oberfläche der Alkalihalogenide sind gegenüber der unrekonstruierten Oberfläche senkrecht verschoben. Diese Relaxation entsteht durch die Polarisierung der Ionen der Oberfläche im elektrostatischen Feld der Ionen des Festkörpers [332, 333]. Wenn sich die Polarisierbarkeit der beiden Ionensorten unterscheidet, dann ist auch ihre Relaxation unterschiedlich. Das Ion mit der größeren Polarisierbarkeit ist gegenüber dem anderen Ion nach außen verschoben. Der Unterschied zwischen den senkrechten Verschiebungen ist das „Rumpling“ δz . Man spricht auch von differentieller Relaxation [334] oder „Buckling“. Ein δz mit positivem Vorzeichen bedeutet eine Verschiebung der Anionen (F^-) bezüglich der Kation (Li^+) von der Oberfläche weg hin zum Vakuum (vergl. Abb. 5.34).

Weil die Elektronen des Kation relativ fest gebunden sind, ist dieses kaum polarisierbar. Im Gegensatz dazu ist das zusätzliche Elektron des Anions nur locker an den Kern gebunden. Die Anionen haben daher eine höhere Polarisierbarkeit und entwickeln im elektrischen Feld der Gitter-Ionen induzierte Dipolmomente. Folglich wirkt auf sie ei-

ne auswärts gerichtete Kraft [339]. Die Polarisierbarkeit der Ionen im Festkörper unterscheidet sich von der freier Ionen [340]. Es gibt auch einige Fälle, bei denen das Rumpling δz negativ ist, wie z.B. bei der CaO(001)-Oberfläche [340–342].

In Abb. 5.42 sind die experimentell ermittelten Werte für das Rumpling δz von LiF(001) (rote Quadrate) den theoretischen Werten (graue Kreise) gegenübergestellt. Frühe LEED-Studien von Laramore *et al.* [267], bei denen die Intensität der Beugungsmaxima als Funktion der Elektronenenergie analysiert wurde (I-V-LEED), ergaben eine Verschiebung der Li⁺-Ionen von $\delta z = 0,25 \text{ \AA}$. Die Beugungsmuster bei der Streuung thermischer He-Atome waren hingegen nach Analysen von Garcia [181, 187] nur mit einer Verschiebung in umgekehrter Richtung mit $\delta z = -(0,036 \pm 0,006) \text{ \AA}$ erklärbar. Ein aktuelleres Experiment von Roberts *et al.* [14], bei dem die Intensität der LEED-Reflexe einer Schicht LiF(001) auf Pt(111) untersucht wurde, ergab eine Verschiebung der Li⁺-Ionen von $\delta z = (0,24 \pm 0,04) \text{ \AA}$, während ähnliche Studien von Vogt *et al.* [268] an einem LiF(001)-Einkristall eine sehr viel kleinere Verschiebung von nur $\delta z = (0,04 \pm 0,20) \text{ \AA}$ ergaben. Der letzte Wert stimmt am besten mit den aktuellen theoretischen Vorhersagen überein, weist aber eine relativ große Unsicherheit auf. In diesem Abschnitt wird gezeigt, dass sich das Rumpling wesentlich genauer aus den Beugungsmustern bei Streuung schneller Atome ableiten lässt.

Bei dem entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten He-LiF(001)-Potential ist der Unterschied Δz zwischen dem Maximum der Äquipotentialflächen über der F-Kette und dem Minimum über der Li-Kette von der Verschiebung δz der Li- gegenüber den F-Ketten abhängig (Abb. 5.34). Dieser Zusammenhang zwischen Korrugation und Rumpling zeigt sich in Abb. 5.26 im Vergleich zwischen den DFT-Potentialen ohne (blau Strich-Punkt-Kurve bzw. graue Kurve mit Quadraten) und mit Berücksichtigung der Korrugation (blaue gestrichelte bzw. graue Kurve mit Dreiecken) genauso wie beim Potential aus He-Li⁺- und He-F⁻-Paarpotentialen (grüne Kurve mit offenen Dreiecken bzw. Kreisen). Der Unterschied von Δz beträgt bei $E_{\perp} > 0,6 \text{ eV}$ für $\delta z = 0,053 \text{ \AA}$ etwa $0,03 \text{ \AA}$. In Abb. 5.40 wurde demonstriert, dass sich die Maxima der Beugungskarte bei einer Änderung von Δz um nur $0,05 \text{ \AA}$ deutlich verschieben. Diese Empfindlichkeit der Position der Intensitätsmaxima auf die Korrugation Δz wird im Folgenden ausgenutzt, um das Rumpling δz zu bestimmen.

Die Korrugation der drei DFT-Potentiale von Pruneda (SIESTA), Aigner *et al.* (COLUMBUS) und Wirtz (ABINIT) divergieren für $E_{\perp} \rightarrow 0$ im Bereich $E_{\perp} < 0,3 \text{ eV}$ (siehe Abb. 5.26). Daher wird im Folgenden nur der Bereich $E_{\perp} > 0,3 \text{ eV}$ betrachtet, in dem sich die drei DFT-

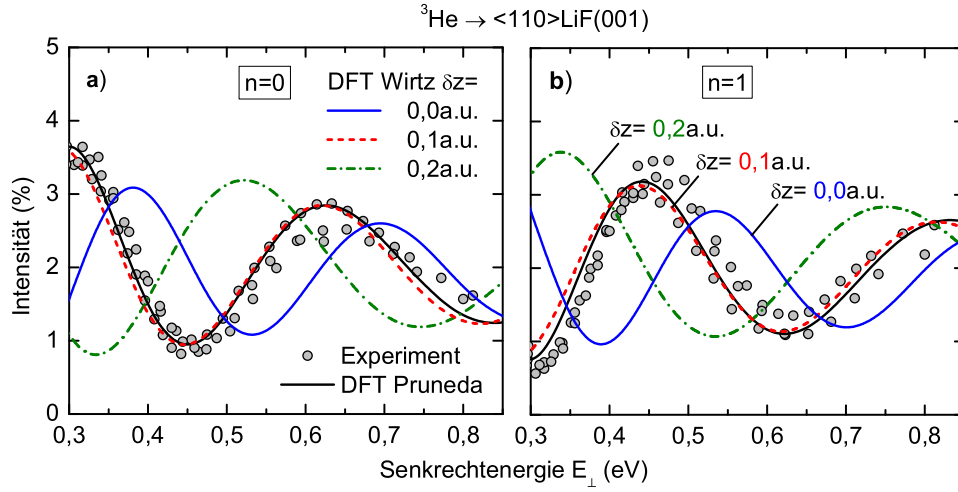


Abb. 5.43: Relative Intensität der Bragg-Reflexe der Ordnungen a) $n=0$ und b) $n=1$ für Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} (graue Kreise) im Vergleich zu den theoretischen Intensitäten in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (2.78) mit Dämpfungsfunktion (Abschn. 5.1.4) für die Korrugation $\Delta z(V = E_{\perp})$ des axial gemittelten DFT-Potentials von Pruneda mit Rumpling $\delta z = 0,049 \text{ \AA}$ [261, 277] (schwarze Kurve) und von Wirtz [280] ohne Rumpling (blaue Kurve) und mit Rumpling $\delta z = 0,1 \text{ a.u.} \approx 0,053 \text{ \AA}$ (rot gestrichelt) und $\delta z = 0,2 \text{ a.u.}$ (grüne Strich-Punkt-Kurve).

Potentiale nur wenig unterscheiden. Unter der Annahme, dass das von Wirtz berechnete DFT-Potential die Abhängigkeit der Korrugation Δz vom Rumpling δz richtig beschreibt, kann über den Vergleich mit dem Experiment das Rumpling bestimmt werden. In Abb. 5.43 sind die gemessenen relativen Intensitäten der Bragg-Reflexe der Ordnung $n=0$ und $n=1$ bei Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} dargestellt (graue Kreise). Die schwarzen Kurven sind identisch mit den durchgezogenen Kurven aus Abb. 5.23, welche die theoretische Intensität nach Gl. (2.78) mit der Korrugation $\Delta z(V = E_{\perp})$ des axial gemittelten DFT-Potentials von Pruneda [261, 277] mit $\delta z = 0,049 \text{ \AA}$ repräsentieren. Die rot gestrichelte Kurve ergibt sich aus der gleichen Rechnung⁹, jedoch bei Verwendung der Korrugation des DFT-Potentials von Wirtz mit einem ähnlichen Rumpling $\delta z = 0,1 \text{ a.u.} \approx 0,053 \text{ \AA}$. Die beiden Kurven unterscheiden sich nur wenig. Wird das Rumpling vernachlässigt, dann ergibt sich die blaue durchgezogene Kurve, deren Maxima zu größeren E_{\perp} verschoben sind und die daher deutlich von den experimentellen Datenpunkten abweicht. Ein Rumpling von $\delta z = -0,036 \text{ \AA}$, wie es von Garcia [181, 187] ermittelt wurde (Abb. 5.42), ist mit den Beugungs-

⁹Insbesondere wurde die gleiche Dämpfungsfunktion benutzt wie in Abb. 5.23.

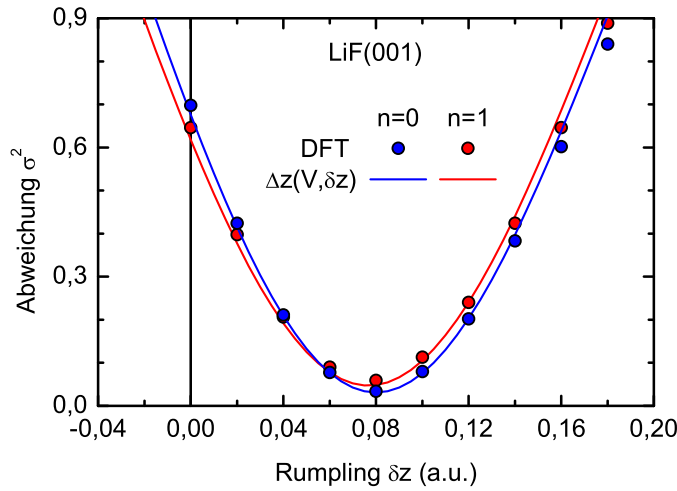


Abb. 5.44: Summe der quadratischen Abweichungen σ^2 der gemessenen relativen Intensität der Beugungsordnung $n=0$ (rot) und $n=1$ (blau) vom theoretischen Wert in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (2.78) mit der Korrugation $\Delta z(V)$ der axial gemittelten DFT-Potentiale von Wirtz [280] für verschiedene Rumpling-Werte δz (Kreise) sowie der Korrugation $\Delta z(V, \delta z)$ aus der analytischen Beschreibung der Äquipotentialflächen nach Gl. (5.14) (Kurven).

mustern bei Streuung schneller He-Atome also nicht vereinbar. Wird das Rumpling auf $\delta z = 0,2 \text{ a.u.} \approx 0,11 \text{ \AA}$ verdoppelt, dann sind die Maxima zu kleineren E_\perp verschoben (grüne Strich-Punkt-Kurve). Eine noch höhere Korrugation wie $\delta z = 0,24 \text{ \AA}$ oder $0,25 \text{ \AA}$ wie sie von Roberts *et al.* [14] bzw. Laramore *et al.* [267] bestimmt wurde, hätte eine noch stärkere Abweichung zur Folge.

Das DFT-Potential wurde für elf verschiedene Werte δz berechnet. Um zu entscheiden, mit welchem Rumpling δz sich die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen ergibt, wurde für jeden Datenpunkt die mittlere quadratische Abweichung

$$\sigma^2 = \sum_{i=1}^N \left\{ \left(\tilde{I}_n \right)_i - (I_n)_i \right\}^2 / N \quad (5.16)$$

von der jeweiligen theoretischen Kurve berechnet. Dabei ist \tilde{I}_n die gemessene Intensität der Ordnung n , N die Anzahl der ausgewerteten Beugungsmuster und I_n die theoretische Intensität. In Abb. 5.44 ist die Abweichung σ^2 für die Beugungsordnung $n=0$ (rote Kreise) und $n=1$ (blaue Kreise) in Abhängigkeit von δz dargestellt. Zusätzlich zu den Punkten für die berechneten Potentiale ist das Ergebnis für die Korrugation $\Delta z(V, \delta z)$ aus der analytischen Beschreibung der Äquipotentialflächen nach Gl. (5.14) als Kurven gegeben. Die Kurven für die Näherung stimmen gut mit den exakt berechneten Punkten überein.

Sowohl für die Beugungsordnung $n = 0$ als auch $n = 1$ zeigt das Potential mit $\delta z = 0,08$ a.u. $\approx 0,042$ Å die beste Übereinstimmung.

Bei der klassischen Simulationen auf Basis des OCB-Potentials wurde beobachtet, dass sich bei Berücksichtigung der thermischen Schwingungen der Atome der Oberfläche die Punkte der dichtesten Annäherung zu größeren Abständen z verschieben [220]. Dieser Effekt ist aus der Theorie der Gitterführung im kristallinen Festkörper bekannt [94, 95]. Der Mittelwert des Potentials zweier um den gleichen Betrag in entgegengesetzte Richtung ausgelenkter Atome unterscheidet sich vom Potential ohne Auslenkung aufgrund der exponentiellen Abhängigkeit der Paarpotentiale vom interatomaren Abstand r . Das axial gemittelte Potential einer Atomkette mit thermisch ausgelenkten Atomen ist daher bei großen Abständen zur Kettenachse ρ stärker als das Potential ohne Auslenkungen (siehe Fig. 28 in Ref. [94] bzw. Fig. 10 in Ref. [95]). Dieser Unterschied ist für die Li-Ketten der LiF(001)-Oberfläche größer als für die F-Ketten. Die effektive Korrugation des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten He-LiF(001)-Potentials verringert sich daher durch die thermischen Schwingungen. Dies führt zu einer Unterschätzung des Rumplings bei der Anpassung der Intensität in Abb. 5.44 bzw. 5.43. Aus dem Vergleich der Simulation mit und ohne thermische Auslenkungen wurde eine Unterschätzung des Rumplings von $0,015$ Å abgeleitet.

Das auf dem OCB-Potential basierende He-LiF(001)-Potential ist jedoch eine schlechte Näherung im relevanten Energiebereich. Die Korrugation des von Wirtz berechneten DFT-Potentials hängt näherungsweise linear von der Verschiebung der Li-Atome bezüglich der F-Atome ab. Diese Verschiebung kann das Rumpling, aber auch eine thermische Auslenkung, repräsentieren. Wegen der näherungsweise linearen Abhängigkeit unterscheidet sich der Mittelwert des Potentials zweier um den gleichen Betrag in entgegengesetzte Richtung z ausgelenkter Atome der Oberfläche nur wenig vom Potential ohne Auslenkung. Daher ändern die thermischen Schwingungen in diesem Modell die effektive Korrugation nur wenig. Aus dem Vergleich der effektiven Korrugation des axial gemittelten DFT-Potentials ohne und mit Berücksichtigung der thermischen Schwingungen leitete Wirtz [280] eine Unterschätzung des Rumplings von $0,005$ Å ab.

Damit ergibt sich aus dem Wert der besten Anpassung unter Berücksichtigung des Effekts der thermischen Schwingungen ein Rumpling $\delta z = 0,047$ Å. Da die Abweichungen aufgrund der Harte-Wand-Näherung sehr klein sind (Abb. 5.35) und eine Änderung von δz um $0,02$ a.u. die Abweichung in etwa verdoppelt (Abb. 5.44), wird die Unsicherheit dieses Ergebnisses mit $\pm 0,015$ Å abgeschätzt. Der hier er-

mittelte Wert stimmt mit dem Ergebnis von Vogt *et al.* [268] überein, ist jedoch um mehr als eine Größenordnung genauer. In Abb. 5.42 wird der Wert mit den Ergebnissen aus aktuellen DFT-Rechnungen von Wang *et al.* [269] ($\delta z = 0,06 \text{ \AA}$), Li [337] ($\delta z = 0,068 \text{ \AA}$), Vogt [338] ($\delta z = 0,06 \text{ \AA}$), Wirtz [279] ($\delta z = 0,053 \text{ \AA}$) sowie dem Ergebnis von Pruneda [261] ($\delta z = 0,049 \text{ \AA}$) verglichen. Diese Werte stimmen gut mit dem hier abgeleiteten Wert überein. Die frühen Schalenmodell-Rechnungen von Benson [332, 335] und Welton-Cook *et al.* [333] überschätzen die Korrugation um das Doppelte.

Zusammenfassung: Die Beugungsmuster bei der Streuung schneller He-Atome entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung von LiF(001) hängen vom Rumpling δz der Oberfläche ab. Die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten ergibt sich mit $\delta z = (0,047 \pm 0,015) \text{ \AA}$. Dieses Ergebnis stimmt mit den theoretischen Werten [261, 269, 279, 336–338] und dem experimentell bestimmten Rumpling von Vogt *et al.* [268] gut überein, ist jedoch genauer als Letzteres. Die von Laramore *et al.* [267], Roberts *et al.* [14] sowie Garcia [181, 187] experimentell abgeleiteten Werte sind mit den Daten aus der Beugung schneller Atome nicht vereinbar.

5.1.8 Überzählige Regenbögen

In den Beugungskarten auf S. 174 bzw. S. 172 ist zu erkennen, wie sich die Maxima unterschiedlicher Bragg-Reflexe n , welche zum selben überzähligen Regenbogen m gehören, mit sinkender Senkrecht-Wellenlänge $\lambda_{dB\perp}$ immer mehr überlagern, bis die überzähligen Regenbögen ein kontinuierliches Maximum bilden (vergl. dazu Abb. 5.2b und c auf S. 120). Die Maxima der überzähligen Regenbögen sind auch dann zu beobachten, wenn keine Bragg-Reflexe auftreten oder diese nicht auflösbar sind, wie z.B. bei der Streuung von He^+ -Ionen bzw. schwererer Atome wie N, Ne oder Ar oder bei Streuung von He-Atomen mit hohen Projektilenergien von bis zu 18 keV. In diesem Abschnitt wird gezeigt, dass diese Art Beugungsmuster beschrieben werden kann, indem man nur die Interferenz zwischen unterschiedlichen Wegen mit gleichem Ablenkwinkel vom Typ A und B (Abb. 2.21) betrachtet. Aus einer korrekten Beschreibung der überzähligen Regenbögen folgt auch die korrekte Beschreibung der relativen Intensität der Bragg-Reflexe.

In Abb. 5.45a wird die Intensitätsverteilung für Streuung von ^4He -Atomen mit $E_0 = 3,00 \text{ keV}$, an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung gezeigt. Es sind keine diskreten Beugungslinien erkennbar, jedoch treten 8 überzählige Maxima im Bereich zwischen den beiden äußeren Re-

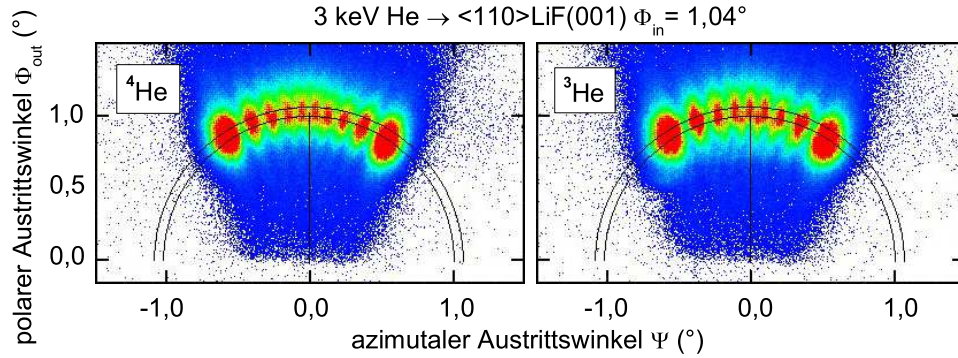


Abb. 5.45: Überzählige Regenbögen bei Streuung von ^4He -Atomen (links) und ^3He -Atomen (rechts) unter denselben Bedingungen: Projektilenergie $E_0 = 3,00 \text{ keV}$, Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 1,04^\circ$, Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung von LiF(001).

genbogenmaxima auf, die augenscheinlich ihren Ursprung bei $\Phi_{\text{out}} = 0$ und $\Psi = 0$ haben. Solche Strukturen wurden von Andreev [144] in einer quantenmechanischen Beschreibung der streifenden Streuung schneller Atome vorhergesagt.

In Abb. 5.46 ist die projizierte Intensität innerhalb des Kreistrings elastisch gestreuter Projektile aus Abb. 5.45a als Funktion des Ablenkungswinkels θ dargestellt (blaue Punkte). Die schwarze Kurve repräsentiert das Ergebnis der semiklassischen Simulationen auf Basis des He-Li⁺- und He-F⁻-HF-Potentials von Gärtner [54, 55] (Abschn. 5.1.5.2), wobei nur die Interferenz zwischen den Trajektorien vom Typ A und B berücksichtigt wurde (Abb. 2.21). Die berechnete Verteilung wurde mit einer Gauß-Funktion gefaltet, um den Effekt der intrinsischen Winkelstreuung zu verdeutlichen, die z.B. durch die thermisch ausgelenkten Atome der Oberfläche verursacht wird. Die Stärke dieser Glättung wurde so gewählt, dass die Höhe der Maxima der überzähligen Regenbögen m und der Minima dazwischen mit dem Experiment übereinstimmt. Die Winkelposition der überzähligen Regenbögen $m > 0$ ändert sich dadurch nicht. Die Intensität am Quantenregenbogen $m = 0$ wird dennoch überschätzt. Dies resultiert aus der Singularität bei θ_{rb} in der klassisch berechneten Intensität, auf der die semiklassische Simulation beruht (siehe Abschn. 2.3.6). Die sonstige Übereinstimmung zwischen dem Experiment und der Simulation zeigt, dass es prinzipiell möglich ist, die überzähligen Regenbögen mit einer primitiv semiklassischen Simulation zu beschreiben, in der nur die Interferenz zwischen unterschiedlichen Wegen mit gleichem Ablenkungswinkel vom Typ A und B betrachtet wird.

Stellt man im Experiment den Atomstrahl von ^4He auf ^3He um und lässt alle anderen Parameter konstant, dann ergibt sich ein verändertes

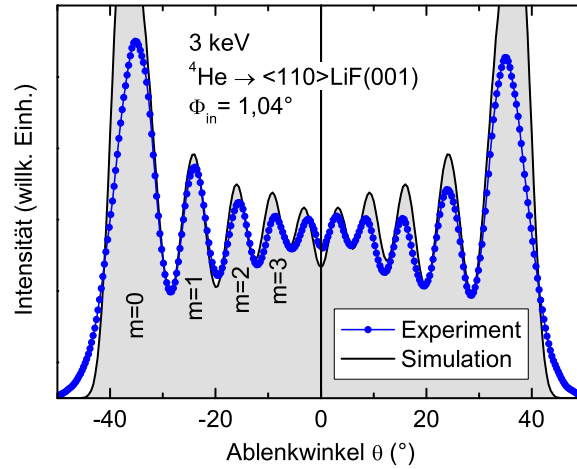


Abb. 5.46: Projektion der Intensität innerhalb des Kreistrings mit Radius $\Phi_{\text{in}} = 1,04^\circ$ aus Abb. 5.45a als Funktion des Ablenkwinkels θ für Streuung von ^4He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (blaue Kreise). Schwarze Kurve: Ergebnis der semiklassischen Simulation basierend auf He-Li $^+$ - und He-F $^-$ -HF-Potentialen [54, 55] mit Rumpling $\delta z = 0,04 \text{ \AA}$ [268]. m ist die Ordnung des überzähligen Regenbogens.

Interferenzmuster. Die in Abb. 5.45b gezeigte Intensitätsverteilung für Streuung von ^3He -Atomen wurde unter den gleichen Bedingungen wie für ^4He aus Abb. 5.45a aufgenommen. Im Unterschied zu ^4He , bei dem insgesamt 10 Maxima auftreten, zeigen sich bei ^3He nur 9 Maxima.

In Abb. 5.47 werden die Projektionen der Intensität innerhalb des Kreistrings aus Abb. 5.45a und b als Funktion des Ablenkwinkels θ für ^3He (rote Punkte) und ^4He (blaue Punkte) direkt miteinander verglichen. Während sich die Regenbogenmaxima an den Rändern der Verteilung kaum unterscheiden, sind die Positionen der überzähligen Maxima umso stärker gegeneinander verschoben, je kleiner $|\theta|$ ist. Bei $\theta = 0$ findet man für ^3He ein Maximum, während ^4He dort ein Minimum aufweist. Beide He-Isotope proben unter den selben Bedingungen das gleiche Wechselwirkungspotential, d.h. die Trajektorien sind identisch. Da sich nur die Massen und damit die De-Broglie-Wellenlängen unterscheiden, ist gezeigt, dass es sich um einen Interferenzeffekt handelt. Die Entstehung und Form des Interferenzmusters wurde bereits in Abschn. 2.3.4.2 anhand der analytischen Lösung für die Streuung an einer sinusförmigen harten Wand erklärt. In diesem Modell ergaben sich bei vergleichbaren Bedingungen ($E_\perp = 1 \text{ eV}$, $\Delta z = 0,34 \text{ \AA}$) ähnliche Intensitätsverteilungen, die genauso bei $\theta = 0$ für ^4He ein Minimum und für ^3He ein Maximum aufweisen (vergl. Abb. 2.14 auf S. 43). Die gleichen Strukturen ergeben sich auch aus den semiklassischen Simulationen auf Basis eines aus He-Li $^+$ - und He-F $^-$ -Potentialen von Kim und Gordon

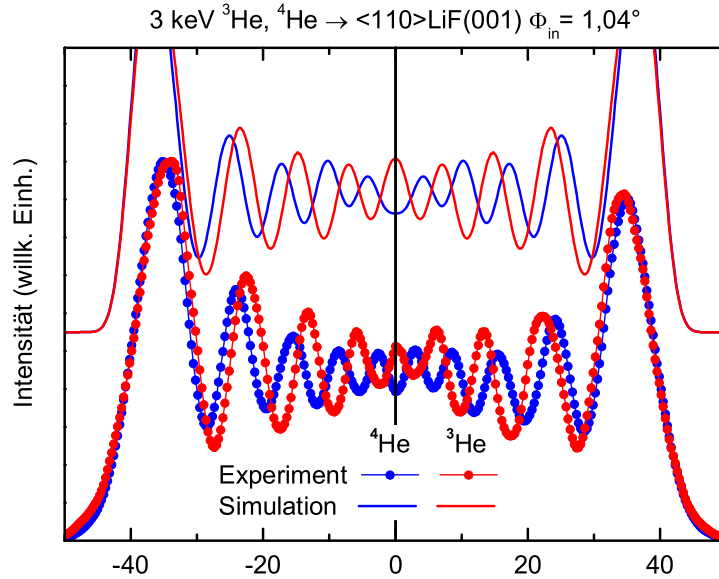


Abb. 5.47: Projektion der Intensität innerhalb des Kreisrings mit Radius $\Phi_{\text{in}} = 1,04^\circ$ aus Abb. 5.45 als Funktion des Ablenkungswinkels θ für ^3He (rote Punkte) und ^4He (blaue Punkte) und Ergebnis der semiklassischen Simulation basierend auf dem Kim-Gordon-Potential [303] unter Berücksichtigung eines Rumplings von $\delta z = 0,04 \text{ \AA}$ [268].

[303] (Abschn. 5.1.5.2) aufgebauten He-LiF(001)-Potentials unter Berücksichtigung des Rumplings ($\delta z = 0,04 \text{ \AA}$ [268]). Die Ergebnisse dieser Simulation sind für beide Isotope in Abb. 5.47 als Kurven gezeigt. Beide Verteilungen wurden mit der gleichen Gauß-Funktion gefaltet. Es zeigt sich das gleiche Bild wie im Experiment, 10 Maxima mit einem Minimum bei $\theta = 0$ für ^4He (blaue Kurve) und 9 Maxima, eines davon bei $\theta = 0$ für ^3He (rote Kurve). Gravielle *et al.* konnten dieses Ergebnisse mit der Eikonal-Näherung bestätigen (Fig. 2 in Ref. [301]).

Da die Positionen der überzähligen Regenbögen von $\lambda_{\text{dB}\perp}$ und vom Bereich des Wechselwirkungspotentials abhängen, den die Trajektorien durchlaufen, ändert sich das Beugungsmuster mit der Projektilenergie. Auf der linken Seite von Abb. 5.48 sind die Intensitätsverteilungen für Streuung von ^4He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung bei verschiedenen Projektilenergien E_0 unter konstantem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 0,71^\circ$ gezeigt. Während bei $E_0 = 8,6 \text{ keV}$ 4 überzählige Maxima zwischen den äußeren Regenbogenmaxima auftreten, sind bei $7,3 \text{ keV}$ nur 3 und bei $5,5 \text{ keV}$ nur 2 überzählige Maxima zu beobachten. Dies ist in der in Abb. 5.48d als Funktion des Ablenkungswinkels θ gezeigten Projektion der Intensität innerhalb des Kreisrings elastisch gestreuter Projektile noch besser zu erkennen (graue Punkte). Während

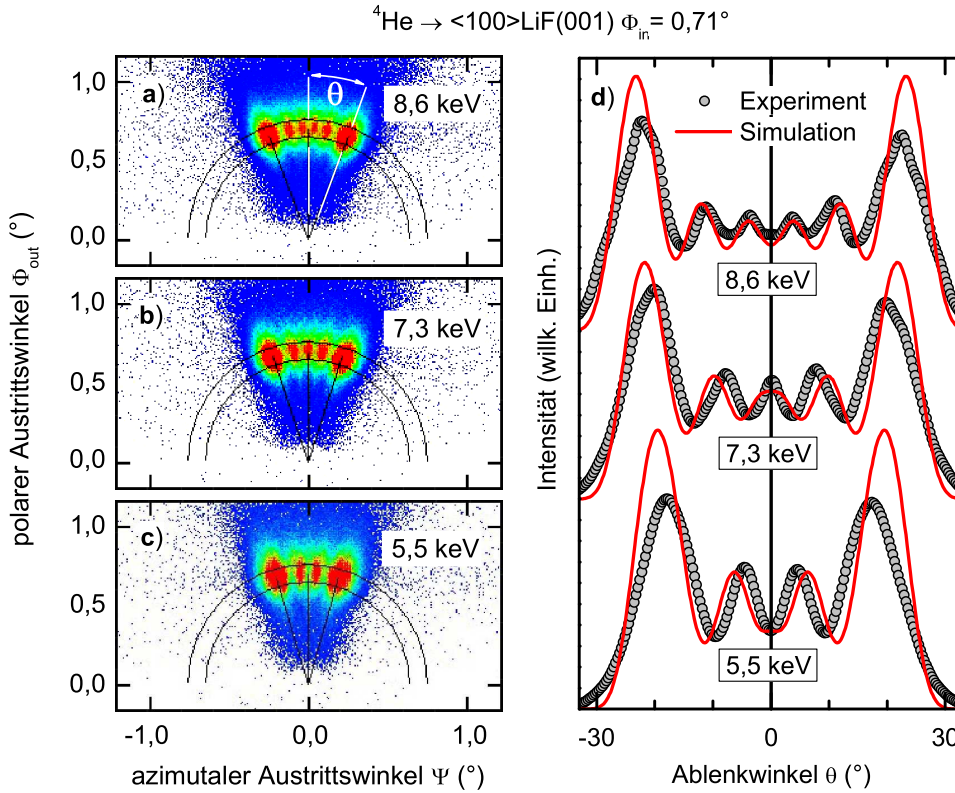


Abb. 5.48: Überzählige Regenbögen. **Links:** Intensitätsverteilungen für Streuung von ${}^4\text{He}$ -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 0,71^\circ$ mit Projektilenergien von a) $E_0 = 8,6 \text{ keV}$, b) $7,3 \text{ keV}$ und c) $5,5 \text{ keV}$. **Rechts:** Projizierte Intensität aus a) bis c) als Funktion des Ablenkungswinkels θ (graue Kreise) und Ergebnis der semiklassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des Kim-Gordon-Potentials [303] (rote Kurve).

die Verteilungen für $5,5 \text{ keV}$ und $8,6 \text{ keV}$ ein Minimum bei $\theta = 0$ aufweisen, tritt dort bei $7,3 \text{ keV}$ ein lokales Maximum auf. Diese Merkmale werden von der gleichen semiklassischen Simulation wie oben, jedoch für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung, gut wiedergegeben (rote Kurven).

Im Unterschied zur hier durchgeführten semiklassischen Simulation basierend auf einem zweidimensionalen Potential wird in der Simulation von Gravielle *et al.* der Streuprozess vollständig dreidimensional simuliert. Die Anwendbarkeit der Kontinuumsnäherung wird durch die Beobachtung gerechtfertigt, dass die Position der überzähligen Regenbögen bei gegebener Senkrechterenergie nicht von der Projektilenergie E_0 abhängt. In Abb. 5.49 sind die Beugungsmuster für Streuung von ${}^4\text{He}$ -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit zwei verschiedenen Projektilenergien $E_0 = 2,2 \text{ keV}$ und $7,5 \text{ keV}$ bei gleicher Senkrechterenergie $E_\perp = 1,04 \text{ eV}$ gezeigt. In beiden Fällen werden die Projekti-

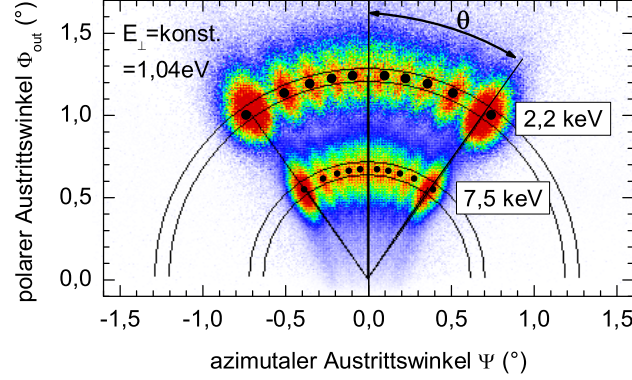


Abb. 5.49: Intensitätsverteilungen bei Streuung von ^4He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung bei zwei verschiedenen Projektilenergien $E_0 = 2.2 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 1.24^\circ$ und $E_0 = 7.5 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0.67^\circ$, bei gleicher Senkrechterenergie $E_{\perp} = 1.04 \text{ eV}$. Die Regenbogenwinkel $\pm\theta_{\text{rb}}$ sind mit Linien markiert. Die schwarzen Punkte repräsentieren die theoretische Position der Maxima aus dem Eikonal-Modell von Gravielle *et al.* [261] basierend auf dem DFT-Potential von Pruneda. Die projizierte Intensität ist in Abb. 5.50 dargestellt.

le in einen Kreisring entsprechend dem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 1.24^\circ$ bzw. 0.67° gestreut, wobei jeweils insgesamt 10 bezüglich $\Psi = 0$ symmetrisch angeordnete Maxima zu beobachten sind. Die schwarzen Punkte in Abb. 5.49 markieren die theoretische Position der Maxima $m = 0$ bis $m = 4$ aus der Eikonal-Rechnung von Gravielle *et al.* basierend auf dem DFT-Potential von Pruneda. Die Maxima gleicher Ordnung m der beiden Verteilungen haben den gleichen Ablenkwinkel θ .

Deutlicher wird das in der in Abb. 5.50 gezeigten Projektion der Intensität innerhalb des jeweiligen Kreisrings als Funktion des Ablenkungswinkels $\theta = \arctan(\Psi/\Phi_{\text{out}})$ (graue Kreise und blaue Quadrate). Die Positionen und die Anzahl der überzähligen Regenbögen m ist bei gleicher Senkrechterenergie E_{\perp} unabhängig von E_0 . Ähnliche Strukturen werden vom Eikonal-Modell von Gravielle *et al.* [261, 301] vorhergesagt. Obwohl in dieser Simulation das komplette dreidimensional korrigierte He-LiF(001) Potential berücksichtigt wird, sind die Eikonal-Ergebnisse für $E_0 = 7.5 \text{ keV}$ (gestrichelte Kurve) und 2.2 keV (durchgezogene rote Kurve) identisch. Die Korrugation des Potentials in Strahlrichtung hat also keinen Effekt auf die Intensitätsverteilung. Die Reduktion des Streuproblems auf zwei Dimensionen mittels der Kontinuumsnäherung ist also eine sehr gute Näherung.

Mit dem Eikonal-Modell wird die relative Intensität in der Umgebung des klassischen Regenbogens (kl. RB) überschätzt, denn diese semiklassische Methode basiert genauso auf klassisch berechneten Tra-

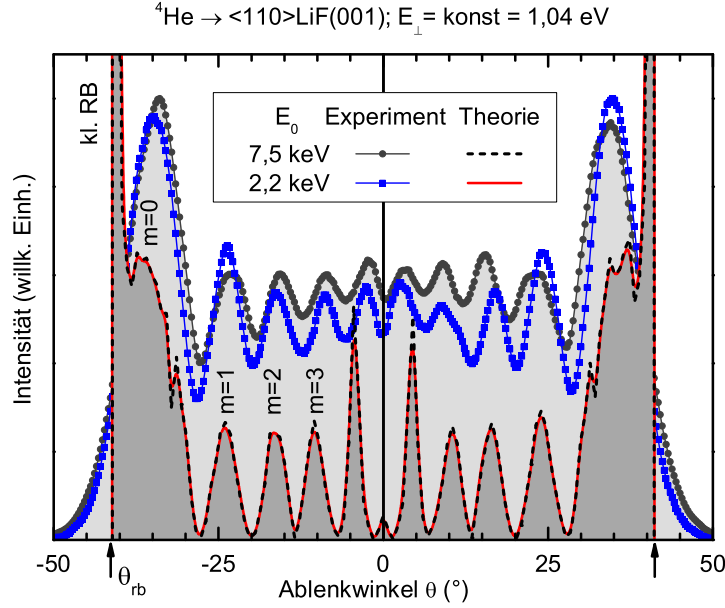


Abb. 5.50: Projizierte Intensität innerhalb des Kreisrings mit Radius Φ_{in} aus Abb. 5.49 als Funktion des Ablenkwinkels θ für $E_0 = 7,5 \text{ keV}$ (graue Kreise) und $2,2 \text{ keV}$ (blaue Quadrate). Rot durchgezogene und schwarz gestrichelte Kurve: Intensität aus der Eikonal-Näherung von Gravielle *et al.* [261, 300] basierend auf dem DFT Potential von Pruneda. Die Ordnung m der überzähligen Regenbögen ist angegeben.

jektorien. Daher zeigt sich auch hier die Singularität bei θ_{rb} (Pfeile in Abb. 5.50). Die Intensität läuft für $\theta \rightarrow \theta_{\text{rb}}$ gegen ∞ und ist Null für $\theta > \theta_{\text{rb}}$.

In Abb. 5.51 sind die Positionen der Maxima m als Funktion von E_0 bei $E_{\perp} = \text{konst} = 1,04 \text{ eV}$ dargestellt. Alle Punkte mit gleichem E_0 entsprechen jeweils einer Verteilung wie in Abb. 5.50. Die Linien sind das Ergebnis aus dem Eikonal-Modell auf Basis des DFT-Potentials von Pruneda, wobei für den Quantenregenbogen $m = 0$ nicht der klassische Regenbogenwinkel θ_{rb} , sondern das erste lokale Maximum $\theta < \theta_{\text{rb}}$ ausgewertet wurde ($m=0$ in Abb. 5.50). Im Rahmen der Messgenauigkeit sind die Ablenkwinkel genauso konstant wie in der Simulation.

Bei gleichem E_{\perp} proben ${}^3\text{He}$ und ${}^4\text{He}$ das gleiche Wechselwirkungspotential, zeigen aber aufgrund der unterschiedlichen Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ unterschiedliche Beugungsmuster (Abb. 5.47). Bei gleichem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ hingegen unterscheidet sich E_{\perp} . Damit unterscheiden sich die entsprechenden Äquipotentialflächen, die von den ${}^4\text{He}$ - und den ${}^3\text{He}$ -Atomen erreicht werden. Weil die Äquipotentialflächen des effektiven Potentials aber die gleiche Korrugation aufweisen, da $\Delta z(V) \approx \text{konst}$, ergeben sich sehr ähnliche Trajektorien, die nur senk-

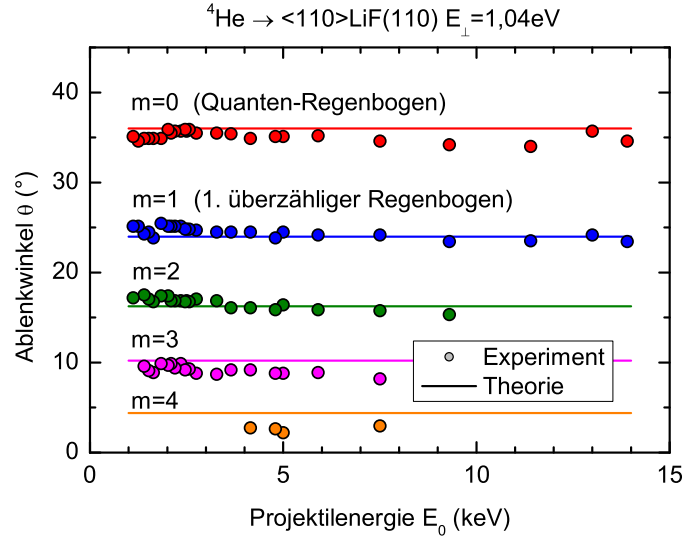


Abb. 5.51: Ablenkungswinkel θ der Maxima der projizierten Intensitätsverteilungen wie in Abb. 5.50 als Funktion der Projektilenergie E_0 bei konstanter Senkrechterenergie $E_{\perp} = 1,04 \text{ eV}$ für Streuung von ^4He -Atomen an $\text{LiF}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung aus dem Experiment (Kreise) und der Eikonal-Rechnung von Gravielle *et al.* [261, 300] auf Basis des DFT-Potentials von Pruneda für den Quantenregenbogen $m = 0$ und die überzähligen Regenbögen $m = 1$ bis $m = 4$ (Linien).

recht zur Oberfläche zueinander verschoben sind. Die Phasenbeziehung zwischen den jeweils interferierenden Trajektorien vom Typ A und B ist also kaum geändert und es ergibt sich für ^3He und ^4He das gleiche Beugungsmuster. In Abb. 5.52 werden die projizierten Intensitätsverteilungen für Streuung von ^3He - und ^4He -Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 1,24^\circ$ bei gleichem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ gezeigt. Bei $\lambda_{\text{dB}\perp} = 0,156 \text{ \AA}$ (links) zeigt sich für ^3He mit $E_0 = 2,4 \text{ keV}$ (rote Punkte) das gleiche Beugungsmuster wie für ^4He mit $1,8 \text{ keV}$ (blaue Punkte). Wäre die Korrugation der Äquipotentialflächen des effektiven Potentials stärker von der Energie abhängig, dann würden sich die Beugungsmuster unterscheiden. Auch in der entsprechenden semiklassischen Simulation (obere durchgezogene Kurven) zeigen sich kaum Unterschiede zwischen ^3He (rot) und ^4He (blau), genauso wie in der Eikonal-Rechnung von Gravielle *et al.* [261, 300] (untere rote bzw. blau gestrichelte Kurve). Die selbe Übereinstimmung ist auch bei anderem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ zu beobachten. Für Abb. 5.52b wurde das gleiche Experiment bei $\lambda_{\text{dB}\perp} = 0,13 \text{ \AA}$ ($3,5 \text{ keV } ^3\text{He}$ bzw. $2,6 \text{ keV } ^4\text{He}$) durchgeführt. Auch hier stimmt Anzahl und Position der überzähligen Regenbögen für ^3He und ^4He genauso überein wie in den entsprechenden Simulationen. Im Unterschied zu den in Abb. 5.52a gezeigten Verteilungen, wo überzählige Regenbögen bis zur Ordnung $m = 4$ auftreten, ist hier auch der fünfte überzählige

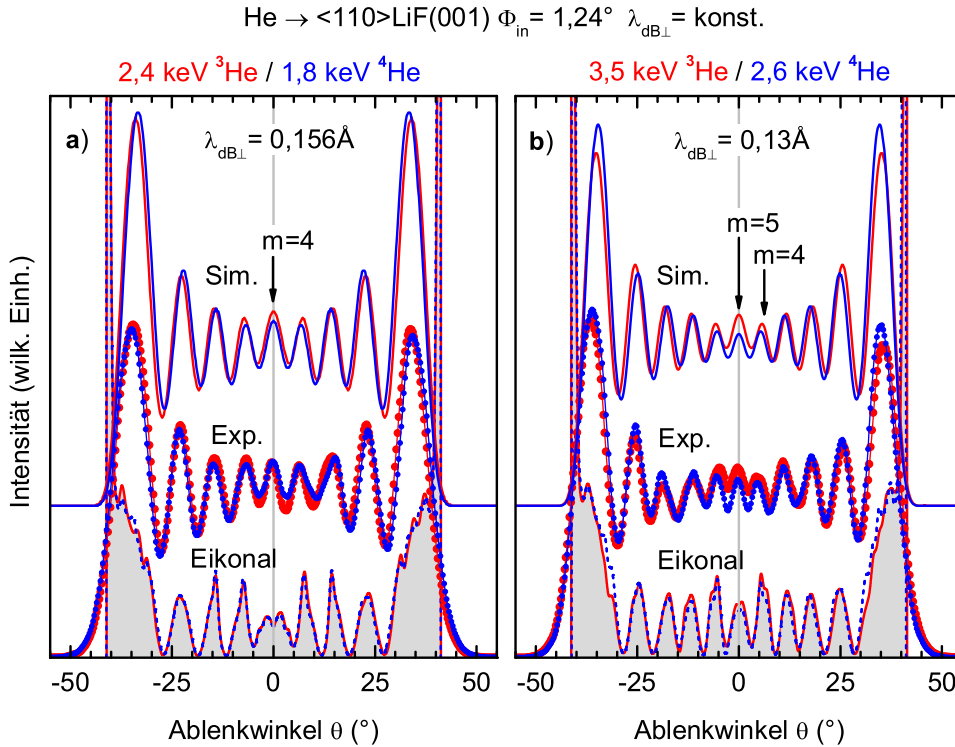


Abb. 5.52: Überzählige Regenbögen für Streuung von ^3He -Atomen (rot) und ^4He -Atomen (blau) bei gleicher Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp} = \text{konst.}$ an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 1,24^\circ$ mit a) $E_0 = 2,4 \text{ keV}$ (^3He) bzw. $1,8 \text{ keV}$ (^4He) und b) $E_0 = 3,5 \text{ keV}$ (^3He) bzw. $2,6 \text{ keV}$ (^4He) aus dem Experiment (Exp., mittlere Kurven), aus der semiklassischen Trajektorien simulation auf Basis der HF-Paarpotentiale von Gärtner [54, 55] unter Berücksichtigung eines Rumlings von $\delta z = 0,04 \text{ \AA}$ [268] (Sim., obere Kurven) und aus der Eikonal-Rechnung von Gravielle *et al.* [261, 300] (Eikonal, untere Kurven) auf Basis des DFT-Potentials von Pruneda. Man beachte die unterschiedliche Anzahl überzähliger Regenbögen m in a) und b).

Regenbogen $m = 5$ präsent.

Die He-Projektile proben mit verschiedenen Senkrechtenergien E_\perp unterschiedliche Bereiche des effektiven Wechselwirkungspotentials. Ein adäquates Potential muss daher die überzähligen Regenbögen in Abhängigkeit von E_\perp beschreiben können. In Abb. 5.53 ist der Ablenkwinkel des Quanten-Regenbogens $m = 0$ und der überzähligen Regenbögen $m = 1$ bis $m = 4$ bzw. der entsprechenden intensivsten Bragg-Reflexe als Funktion von E_\perp für Streuung von ^3He -Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ - (oben) bzw. einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (unten) aufgetragen (farbige Kreise). Bei $E_\perp < 1 \text{ eV}$ zeigen die experimentellen Verteilungen bei den Winkeln ein Maximum, die auch die Bragg-Bedingung Gl. (2.62) erfüllen (graue durchgezogene Kurven). Der Bragg-Reflex der Ordnung

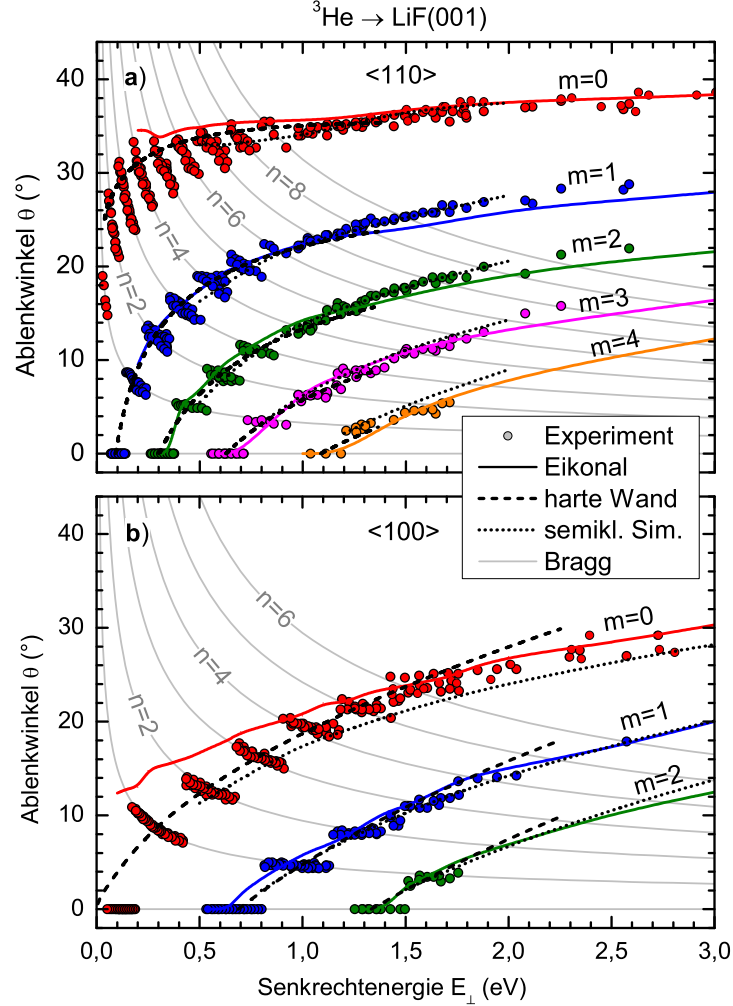


Abb. 5.53: Ablenkwinkel θ des Quanten-Regenbogens $m=0$ und der überzähligen Regenbögen $m=1$ bis $m=4$ bzw. der intensivsten Bragg-Reflexe als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} bei Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an LiF(001) entlang a) einer $\langle 110 \rangle$ - und b) einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (farbige Kreise). Farbige durchgezogene Kurven: Ergebnisse der Eikonal-Rechnung von Gravielle *et al.* [261, 300, 301] ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung auf Basis des DFT-Potentials von Pruneda. Gepunktete Kurven: semiklassische Simulation ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung auf Basis des Potentials aus HF-Paarpotentials von Gärtner [54, 55]. Gestrichelte Kurven: Harte-Wand-Näherung ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung durch Lösung von Gl. (2.83) für $n \in \mathbb{R}$ für a) die Korugation Δz des DFT-Potentials von Pruneda und b) für die Korugation des Potentials aus HF-Paarpotentials mit Korrektur der Harte-Wand-Näherung $f=1,2$. Graue durchgezogene Kurven: theoretische Position der Bragg-Reflexe n nach Gl. (2.62).

n , der am dichtesten bei der Position eines überzähligen Regenbogens der Ordnung m liegt, ist am intensivsten. Da die Ablenkwinkel der Bragg-Reflexe θ_n mit E_\perp kleiner werden, während die Ablenkwinkel der überzähligen Regenbögen θ_m zunehmen, steigt die Ordnung n des jeweils intensivsten Bragg-Reflexes sukzessive. Die durchgezogenen farbigen Kurven in Abb. 5.53 repräsentieren die Winkelposition θ_m der überzähligen Regenbögen m aus der Eikonal-Rechnung von Gravielle *et al.* [261, 300, 301] auf der Basis des DFT-Potentials von Pruneda. Um die Abhängigkeit der überzähligen Regenbögen von E_\perp besser erkennen zu können, wurde in dieser Rechnung die Bragg-Bedingung vernachlässigt, indem nur die Trajektorien aus einer Einheitszelle berücksichtigt wurden.

Jedes Potential $V(x, y, z)$, das nach der axialen Mittlung ein ähnliches Potential $V(x, z)$ aufweist, erzeugt die gleichen Beugungsmuster. Um die Konsistenz eines abgeleiteten Potentials $V(x, y, z)$ zu demonstrieren, ist es daher notwendig, zwei verschiedene Gitterführungsrichtungen y zu betrachten. Die Kurven aus der Eikonal-Rechnung zeigen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten für $m \geq 1$ sowohl für die $\langle 110 \rangle$ - als auch für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Lediglich die Position des Quanten-Regenbogens $m = 0$ wird bei kleinen E_\perp etwas überschätzt, da die Eikonal-Näherung aufgrund der Singularität am klassischen Regenbogen die Intensität in dessen Umgebung nur unzureichend beschreibt (siehe kl. RB und $m=0$ in Abb. 5.50). Da die Positionen der überzähligen Regenbögen für beide Gitterführungsrichtungen gut mit dem Experiment übereinstimmen und eine Änderung der Korrugation Δz um nur $0,05 \text{ \AA}$ eine deutliche Verschiebung verursacht (siehe Abb. 5.40), kann man folgern, dass das DFT-Potential von Pruneda korrekt ist.

Die gestrichelten Kurven in Abb. 5.53a sind das Ergebnis der Harte-Wand-Näherung ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung durch Bestimmung der Maxima der Bessel-Funktionen J_n^2 für $n \in \mathbb{R}$ und Lösung von Gl. (2.83) für die Korrugation Δz des DFT-Potentials von Pruneda (rote Kurve in Abb. 5.26). Die Übereinstimmung mit der Eikonal-Rechnung zeigt, dass die Näherung des Potentials durch eine sinusförmige harte Wand eine gute Approximation ist. Sie ist auch für $m = 0$ und für $E_\perp < 0,2 \text{ eV}$ gültig, bei der die Eikonal-Rechnung ungenau ist. Für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung muss die in Abschn. 5.1.5.2 abgeleitete Korrektur der Abweichungen aufgrund der Näherung durch die harte Wand von $f = 1,2$ berücksichtigt werden. Die gestrichelten Kurven in Abb. 5.53b repräsentieren die in Harte-Wand-Näherung aus der durch Lösung von Gl. (2.83) mit $\Delta z_{\text{HWN}} = \Delta z / f$ berechneten Positionen der überzähligen Regenbögen. Für $\Delta z(V = E_\perp)$ wurde dabei die mit der

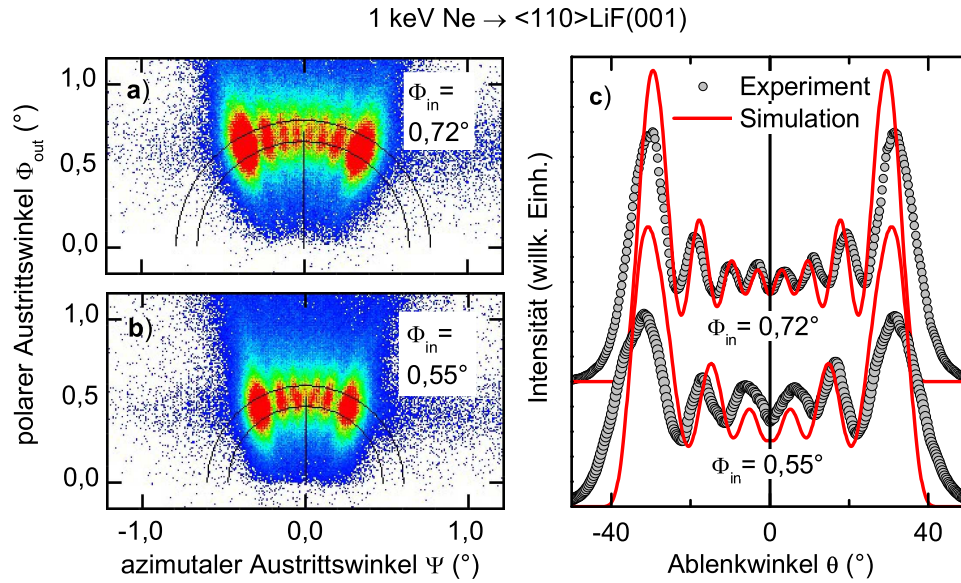


Abb. 5.54: Überzählige Regenbögen bei Streuung von Ne. **Links:** Intensitätsverteilung für Streuung von ^{20}Ne -Atomen an LiF(001) mit $E_0 = 1 \text{ keV}$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter Einfallswinkel a) $\Phi_{\text{in}} = 0,72^\circ$ und b) $0,55^\circ$. **Rechts:** Projizierte Intensität aus a) und b) als Funktion des Ablenkwinkels θ (graue Kreise) und Ergebnis der semiklassischen Simulation auf Basis des Kim-Gordon-Potentials [303] unter Berücksichtigung des Rumplings [268] (Kurven).

Korrugation des mit COLUMBUS berechneten DFT-Potentials übereinstimmende Korrugation des axial gemittelten Potentials aus HF-Paarpotentials verwendet (blau gestrichelte Kurve in Abb. 5.32). Zum Vergleich ist auch das Ergebnis aus der semiklassischen Simulation auf Basis des Potentials aus HF-Paarpotentials als schwarz gepunktete Kurve dargestellt. Dabei wurde die Bragg-Bedingung vernachlässigt, indem nur die Interferenz zwischen Trajektorien vom Typ A und B berücksichtigt wurde. Für $E_\perp > 1 \text{ eV}$ nehmen die Abweichungen zwischen Simulation und Harte-Wand-Näherung zu, da die Form der Äquipotentialflächen mit zunehmender Energie stärker von einer Sinus-Funktion abweicht. Für $E_\perp < 1 \text{ eV}$ kann die Harte-Wand-Näherung den Quanten-Regenbogen $m = 0$ besser beschreiben als die Eikonal-Rechnung.

Auch für schwerere Projektile wie N, Ne und sogar Ar wurden überzählige Regenbögen beobachtet. Für diese Elemente ist es auch bei minimal einstellbarer Projektilenergie nicht möglich, diskrete Bragg-Reflexe aufzulösen. In Abb. 5.54a und b werden die Intensitätsverteilungen für die Streuung von Ne-Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ für zwei unterschiedliche Einfallswinkel gezeigt. Bei $\Phi_{\text{in}} = 0,72^\circ$ treten sechs überzählige Maxima zwischen den beiden äußeren Regenbogenmaxima auf, für $\Phi_{\text{in}} = 0,55^\circ$ sind es hingegen nur vier.

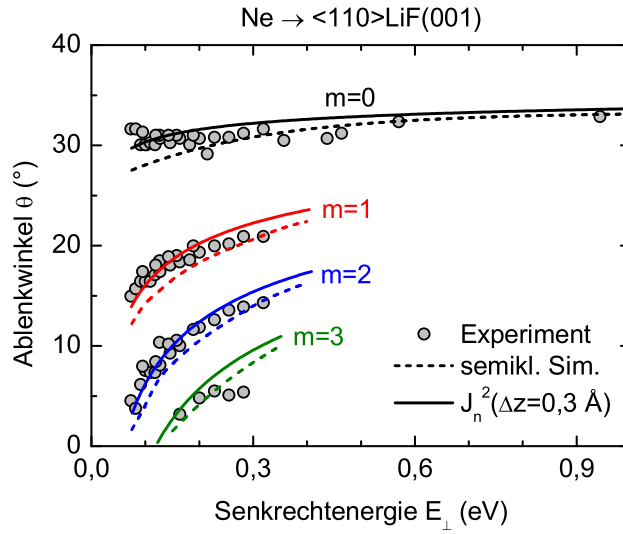


Abb. 5.55: Ablenk Winkel des Quanten-Regenbogens und der überzähligen Regenbögen bei Streuung von Ne-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrechtere Energie E_{\perp} . Kreise: Maxima aus den experimentellen Intensitätsverteilung für Projektilenergien $0,8 \text{ keV} \leq E_0 \leq 3,5 \text{ keV}$ unter Einfallswinkeln $0,55^\circ < \Phi_{\text{in}} < 0,72^\circ$. Gestrichelte Kurven: Ergebnisse der semiklassischen Simulation für den Quanten-Regenbogen $m=0$ und die überzähligen Regenbögen $m=1$ bis $m=3$ auf Basis der Ne-Li $^+$ - und Ne-F $^-$ -Paarpotentiale von Kim und Gordon [303]. Durchgezogene Kurven: Maxima der Bessel-Funktionen J_n^2 nach Gl. (2.83) mit $n \in \mathbb{R}$ für eine sinusförmige harte Wand mit konstanter Korrugation $\Delta z = 0,3 \text{ \AA}$.

Zwar bleibt die De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} konstant, die Senkrechtede-Broglie-Wellenlängen $\lambda_{\text{dB}\perp} = \lambda_{\text{dB}}/\sin\Phi_{\text{in}}$ unterscheiden sich jedoch. Außerdem erreichen die Ne-Projektile aufgrund ihrer unterschiedlichen Senkrechtere Energie $E_{\perp} = E_0 \sin^2\Phi_{\text{in}}$ verschiedene Bereiche des axial gemittelten Ne-LiF(001)-Potentials. Daher ergeben sich unterschiedliche Interferenzmuster. Diese werden von der gleichen semiklassischen Simulation wie für die Streuung von He-Atomen an LiF(001) aus Abb. 5.46 gut beschrieben, wobei hier das Kim-Gordon-Potential für Ne-Li $^+$ und Ne-F $^-$ verwendet wurde. In Abb. 5.54c werden die Projektionen der Intensitäten aus Abb. 5.54a und b als Funktion von θ mit den Ergebnissen der Simulation verglichen. Die Anzahl der Maxima und das Minimum bei $\theta=0$ werden gut beschrieben. Für die korrekte Beschreibung der Intensität in der Umgebung des klassischen Regenbogens müsste – wie oben und in Abschn. 2.3.6 diskutiert – das Modell noch erweitert werden. Ein ähnliches Bild ergibt sich für die Streuung von N-Atomen und andeutungsweise (nur $m=1$) auch für die Streuung von Ar-Atomen.

In Abb. 5.55 sind die Ablenk Winkel θ der Maxima der überzähligen Regenbögen und des Quanten-Regenbogens bei Streuung von

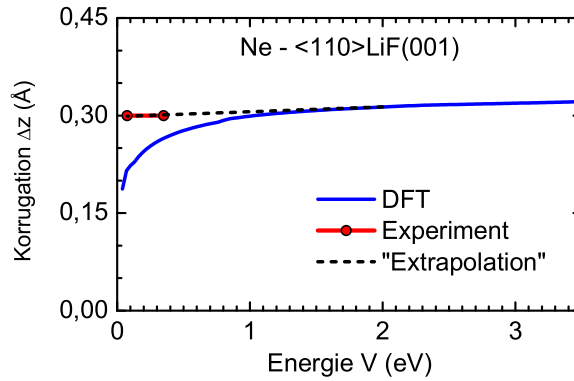


Abb. 5.56: Korrugation Δz der Äquipotentialflächen des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Ne-LiF(001)-Potentials $V(x, z)$. Blaue Kurve: Ne-LiF(001)-DFT-Potential von Staemmler [253, 343]. Rote Kreise: Ergebnisse aus der besten Anpassung an die überzähligen Regenbögen in Abb. 5.55. Gestrichelte Kurve: „Extrapolation“ des DFT-Potentials zu Energien $V < 1$ eV wie in Ref. [279].

Ne-Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit Projektilenergien im Bereich von $E_0 = 0,8$ keV bis 3,5 keV unter Einfallswinkeln im Bereich von $\Phi_{\text{in}} = 0,55^\circ$ bis $0,72^\circ$ als Funktion der Senkrechterenergie E_\perp dargestellt (Kreise). Die gestrichelten Kurven repräsentieren das Ergebnis der semiklassischen Simulation für den Quanten-Regenbogen $m = 0$ und die überzähligen Regenbögen $m = 1$ bis $m = 3$. Die Kurven zeigen zwar eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten, allerdings sind hier die Beiträge des von den Ionen der Oberfläche induzierten Dipols des Ne-Projektils noch nicht berücksichtigt. Mit einem Potential aus HF-Paarpotentialen unter Berücksichtigung dieses zusätzlichen Beitrags ergaben sich aber Abweichungen [302].

Die durchgezogenen Kurven in Abb. 5.55 sind das Ergebnis für eine sinusförmige harte Wand mit konstanter Korrugation $\Delta z = \text{konst}$ aus der Anpassung der Maxima der Bessel-Funktionen $J_n^2(\Delta z)$ durch Lösung von Gl. (2.83) mit $n \in \mathbb{R}$ an die Maxima der überzähligen Regenbögen. Die beste Übereinstimmung zeigte sich für $\Delta z = 0,3 \text{ \AA}$. In Abb. 5.56 ist die Korrugation Δz des von Staemmler [253, 343] berechneten entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Ne-LiF(001)-DFT-Potentials als Funktion der Energie V dargestellt (blaue Kurve). Für $V > 1$ eV ist diese näherungsweise konstant mit $\Delta z \approx 0,3 \text{ \AA}$. Das DFT-Potential weist aber keinen anziehenden Bereich $V(x, y, z) < 0$ auf. Für kleine Energien läuft Δz daher gegen Null. Nach einer Abschätzung von Klein und Cole [327] steigt die Korrugation des Ne-LiF(001)-Potentials aber für $V(x, y, z) < 250$ meV sogar geringfügig mit fallender Energie. Wird Δz aus dem Bereich $V > 1$ eV hin zu kleineren Energien linear extrapoliert (gestrichelte Gerade), so wie es Aigner *et al.* in Ref. [279]

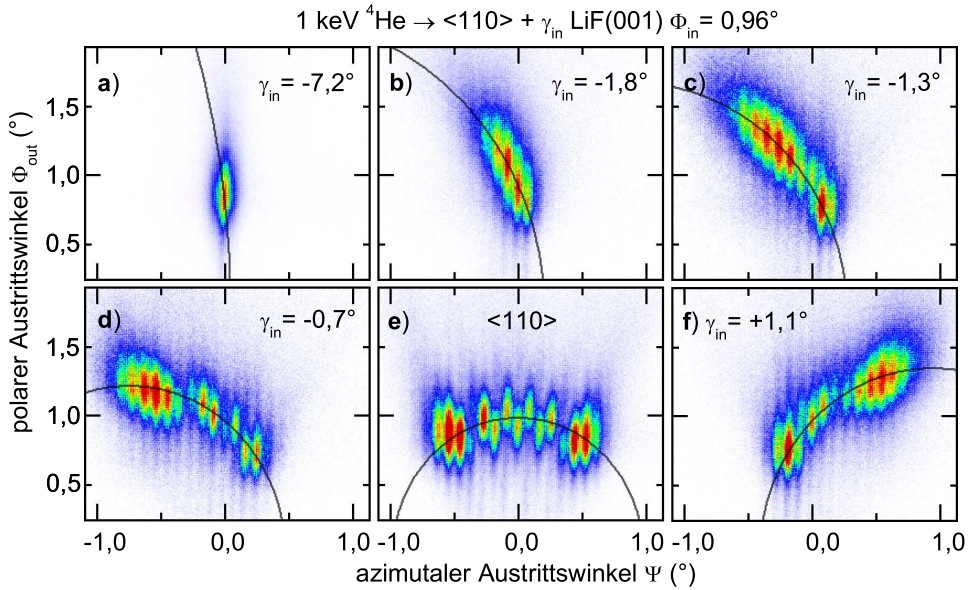


Abb. 5.57: Beugungsmuster bei azimuthaler Verdrehung γ_{in} des einfallenden Atomstrahls gegen die $\langle 110 \rangle$ -Gitterführungsrichtung bei Streuung von ^4He -Atomen an LiF(001) mit $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ unter polarem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 0,96^\circ$ bei a) $\gamma_{\text{in}} = -7,2^\circ$, b) $-1,8^\circ$, c) $-1,3^\circ$, d) $-0,7^\circ$, e) $0^\circ \equiv \langle 110 \rangle$ und f) $+1,1^\circ$. Die grauen Kurven zeigen die theoretische Position der elastisch gestreuten Projektile.

für He-LiF(001) gemacht haben (grüne Kurve in Abb. 5.26), dann ergibt sich die gleiche Korrugation (rote Kreise) wie aus der Anpassung an die überzähligen Regenbögen in Abb. 5.55. Eine genauere Analyse mit einem adäquaten DFT-Potential ist geplant [302].

Zusammenfassung: Die Maxima der überzähligen Regenbögen sind auch dann zu beobachten, wenn keine Bragg-Reflexe aufgelöst werden können, wie z.B. bei der Streuung von Ne-Atomen. Der Unterschied zwischen den Intensitätsverteilungen von ^3He und ^4He bei gleichen Streubedingungen belegt, dass es sich um Beugungsmuster handelt. Diese können mit einer semiklassischen Simulation ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung beschrieben werden. Die Übereinstimmung mit den gemessenen Ablenkwinkeln zeigt, dass das der Simulation zugrunde liegende Potential adäquat ist.

5.1.9 Beugungsmuster bei azimuthaler Verdrehung

In den vorangegangenen Abschnitten wurden die Beugungsmuster bei Streuung entlang verschiedener Gitterführungsrichtungen untersucht. Dabei ergeben sich folgende Fragen die in diesem Abschnitt behandelt

werden: Wie genau muss der Atomstrahl bezüglich der axialen Ketten ausgerichtet werden? Wie genau kennt man überhaupt die Gitterrichtung? Verschwindet das Interferenzmuster bei kleinen Abweichungen vom exakten Winkel? Ändert sich das Beugungsmuster und führt dies zu Fehlern bei der Analyse der Daten?

In Abb. 5.57 sind Intensitätsverteilungen bei azimuthaler Verdrehung der Richtung des einfallenden Atomstrahls gegen die exakte Gitterführungsrichtung abgebildet. Im gezeigten Beispiel wurden ^4He -Atome an $\text{LiF}(001)$ mit $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ unter polarem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 0,96^\circ$ gestreut. Der Winkel der azimuthalen Verdrehung γ_{in} bezüglich der $\langle 110 \rangle$ -Richtung ist jeweils angegeben.

Die Gitterführungsrichtung ist anhand einer bezüglich des azimuthalen Austrittswinkels Ψ symmetrischen Streuverteilung wie in Abb. 5.57e zu erkennen und auf diese Weise genau definiert. Die Beugungsmuster in Gitterführungsrichtung sind daher reproduzierbar. Jedoch ändert sich die Streuverteilung bereits innerhalb des Spiels des Getriebes des Schrittmotors, mit dem die azimuthale Ausrichtung des Kristalls zum einfallenden Strahl eingestellt wird. Das Spiel beträgt $\gamma_{\text{in}} \approx 0,08^\circ$. Die Ablesegenauigkeit der Skala der Rotation am Manipulator ist mit $\pm 0,2^\circ$ noch geringer. Eine genaue Untersuchung der Streuung in Abhängigkeit von γ_{in} war daher mit dem Aufbau nicht möglich. Die Unsicherheit der in Abb. 5.57a bis 5.57f angegebenen Werte für γ_{in} werden mit $\pm 0,1^\circ$ abgeschätzt.

Wenn man die Kristallachse bezüglich des Atomstrahls azimuthal verdreht, erhöht sich der Einfallswinkel des Atomstrahls bezüglich der Atomketten zu $\beta = \sqrt{\Phi_{\text{in}}^2 + \gamma_{\text{in}}^2}$. Die elastisch gestreuten Projektile werden dann näherungsweise in einen Halbkreis mit dem Radius β auf dem MCP-Detektor registriert. Der Ursprung dieses Kreises liegt bei $\Psi = \gamma_{\text{in}}$ und $\Phi_{\text{out}} = 0$. Der Kreis für elastisch gestreute Projektile ist in Abb. 5.57 jeweils als graue Kurve eingezeichnet. Die Maxima der Intensitätsverteilung liegen auf diesem Kreis an der Stelle, an der gleichzeitig die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ ändert sich innerhalb der Messgenauigkeit des MCP-Detektors nicht, sodass eine azimuthale Verkipfung nicht zur Unsicherheit bei der Bestimmung der Breite eines Gitterführungskanal d beiträgt.

Da sich mit γ_{in} sowohl der Winkel β als auch die Senkrechtenenergie bezüglich der Atomketten ändert, variiert auch die Phasenverschiebung zwischen den zwei Trajektorien mit gleichem Ablenkwinkel θ . Diese Änderung der Interferenzbedingungen führt zu einer Intensitätsmodulation jeder Beugungsordnung n auf dem Kreis elastischer Streuung in Abhängigkeit von γ_{in} . Zur Illustration dieses Effekts wurden die Intensitäten innerhalb eines schmalen Intervalls polarer Austrittswinkel Φ_{out}

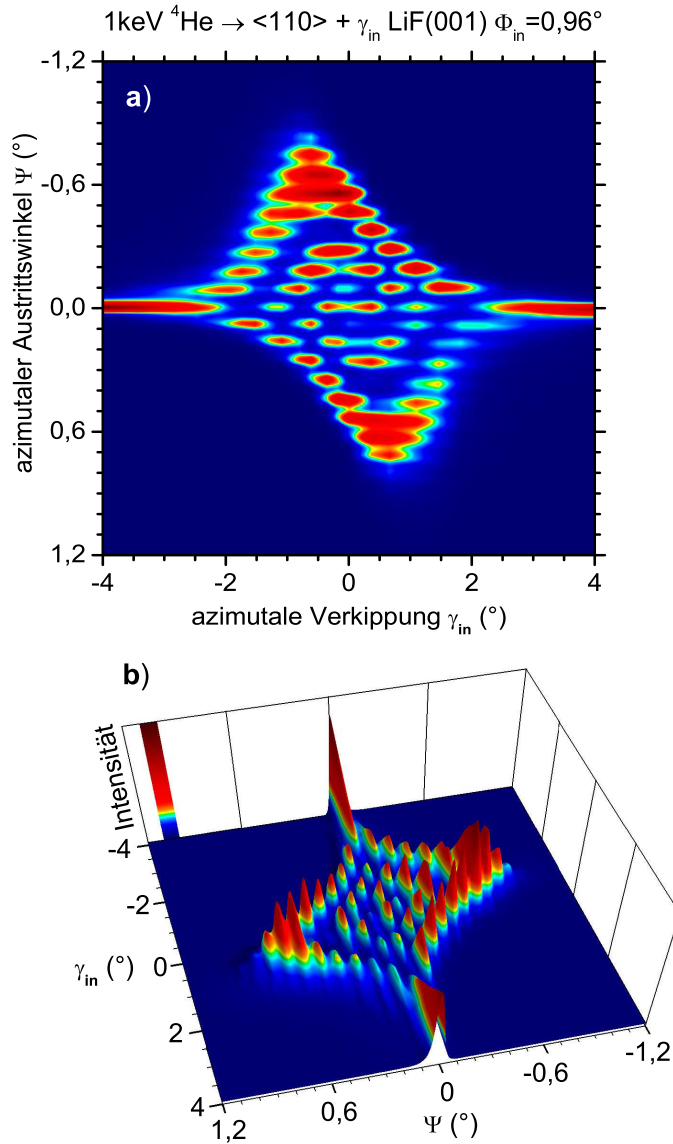


Abb. 5.58: Intensitätsmodulation der verschiedenen Beugungsordnungen bei azimuthaler Verdrehung γ_{in} des einfallenden Atomstrahls gegen die $\langle 110 \rangle$ -Gitterführungsrichtung bei Streuung von ^4He -Atomen an LiF(001) mit $E_0 = 1,00\text{ keV}$ unter polarem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 0,96^\circ$. **a)** $\Psi(\gamma_{\text{in}})$ -Beugungskarte aus der projizierten Intensität der Beugungsmuster wie in Abb. 5.57 als Funktion von γ_{in} . **b)** Daten aus a) in 3D-Darstellung.

um den Kreis elastischer Streuung auf die Achse des azimuthalen Ausfallswinkel Ψ projiziert und in Abb. 5.58a in einer Beugungskarte als Funktion des Winkels der azimuthalen Verdrehung γ_{in} dargestellt. Das dieser $\Psi(\gamma_{\text{in}})$ -Beugungskarte zugrunde liegende 3D-Diagramm wird in Abb. 5.58b gezeigt¹⁰. Deutlich sind Bragg-Reflexe bis $|n| < 9$ als parallele Streifen mit konstantem Ψ zu erkennen¹¹. Die Intensität entlang $\Psi_n = \text{konst}$ oszilliert in Abhängigkeit von γ_{in} unterschiedlich für verschiedene Beugungsordnungen n . Für $n=1$ sind z.B. 5 Maxima erkennbar, $n=2$ zeigt 4 Maxima, $n=3$ zeigt 3 usw. Während bei exakt axialer Ausrichtung $\gamma_{\text{in}} = 0^\circ$ Ordnungen bis zu $n = \pm 7$ Intensität aufweisen (Vergl. Abb. 5.57e), werden bei einer Verkipfung von z.B. $\gamma_{\text{in}} \approx -0,7^\circ$ Projektile in Ordnungen von $n = -9$ bis $n = 3$ gestreut. Daher ist Abb. 5.58a nicht spiegelsymmetrisch sondern punktsymmetrisch zum Ursprung. Unterschiede in der Höhe symmetrisch äquivalenter Maxima ergeben sich aus der inhomogenen Nachweiseffizienz des MCP-Detektors, die hier nicht korrigiert wurde. Die Intensitätsmodulation als Funktion von γ_{in} ist analog zur Modulation der Intensität der Beugungsreflexe mit dem Einfallswinkel bei der thermischen He-Streuung (z.B. Fig. 3 in Ref. [78]).

Ab $|\gamma_{\text{in}}| > 3^\circ$ geht die gesamte Intensität in die nullte Beugungsordnung. In diesem Bereich wird die Streuung durch planare Gitterführung bestimmt (Random-Richtung). Erst wenn γ_{in} klein genug ist, können Projektile vom korrigierten Wechselwirkungs-Potential abgelenkt und aus der Einfallsebene heraus in Beugungsordnungen $|n| > 0$ gestreut werden. Dies ist charakteristisch für den Übergang von planarer zu axialer Oberflächen-Gitterführung.

Ruiz *et al.* haben das Konzept der Quasiresonanz-Analyse [344] auf die Beugung schneller Atome bei streifender Streuung übertragen. In dieser Interpretation wird das Intervall γ_{in} um die Gitterführungsrichtung, in der ein Impulsübertrag aus der Senkrechtbewegung der Projektile in eine Bewegung quer zur Einfallsebene möglich ist, als Quasiresonanzregion (QR) betrachtet. Die Breite der QR ist dabei von der Form des Potentials abhängig und kann klassisch ermittelt werden. Zur Beschreibung der Intensitäten für Streuung innerhalb der QR werden die Quanteneffekte dann aber berücksichtigt. Die Intensitätsmodulation als Funktion von γ_{in} kann mit diesem Modell berechnet werden (siehe Fig. 2 in Ref. [344]).

Für die Berechnung der Intensitätsverteilungen bei $\gamma_{\text{in}} \neq 0$ mit der Simulation in primitiv semiklassischer Näherung (Abschn. 2.3.6) muss

¹⁰Die Verteilungen wurden auf die Summe von $n=0$ und $n=1$ normiert.

¹¹Abweichungen ergeben sich aus der Inhomogenität der örtlichen Auflösung des MCP-Detektors.

die Anfangsgeschwindigkeit bezüglich der Einfallsebene bei der Iteration nach Gl. (2.91) entsprechend auf $v_x(t=0) = \sqrt{2E_0/M} \sin\gamma_{\text{in}}$ gesetzt werden.

Da auch für diese Rechnungen die Ergebnisse stark von der Form des Potentials abhängen, können experimentelle $\Psi(\gamma_{\text{in}})$ -Beugungskarten wie in Abb. 5.58 mit den Simulationen für verschiedene theoretische Potentiale verglichen werden, um deren Gültigkeit zu testen. Dies wäre vor allem bei Systemen ein Vorteil, bei denen schon bei kleinen Projektilenergien E_0 Dekohärenzprozesse einsetzen (siehe Abb. 5.17 S. 138) und eine Variation von E_0 für die Messung einer $\theta(\lambda_{\text{dB}\perp})$ -Beugungskarte – wie in Abb. 5.37 – daher nicht möglich ist. Da bei der Messung einer $\Psi(\gamma_{\text{in}})$ -Beugungskarte sowohl Φ_{in} als auch E_0 konstant bleiben, wird sich der Anteil des inkohärenten Untergrunds nicht ändern.

Zusammenfassung: Die relative Intensität der Beugungsordnungen ist empfindlich von der azimuthalen Ausrichtung des Atomstrahls bezüglich der Gitterführungsrichtung abhängig. Die exakte Ausrichtung ist durch eine bezüglich des azimuthalen Austrittswinkels symmetrisches Beugungsmuster gekennzeichnet. Die Oszillation der Beugungsordnungen in Abhängigkeit der azimuthalen Verdrehung kann genutzt werden, um das Wechselwirkungspotential von Systemen zu untersuchen, bei denen eine Variation der Projektilenergie nicht möglich ist.

5.1.10 Klassische Regenbögen und Potentiale

In den vorangegangenen Abschnitten wurden die Beugungsmuster bei Streuung von Atomen mit Energien im Bereich $E_{\perp} < 2 \text{ eV}$ studiert, das entsprechende Wechselwirkungspotential also nur in diesem Energiebereich betrachtet. In diesem Abschnitt werden die klassischen Regenbogenwinkel bei der Streuung unterschiedlicher Atomsorten bei höheren Senkrechtenenergien mit den theoretischen Werten aus der Simulation verglichen, um Rückschlüsse auf das zugrundeliegende Potential im Energiebereich von einigen 10 eV zu ziehen. Zunächst werden anhand der Streuung von Ne-Atomen die charakteristischen Eigenschaften der klassischen Regenbögen bei Streuung an LiF(001) erläutert. Um die Allgemeingültigkeit zu demonstrieren, werden anschließend die Ergebnisse für weiterer Projektilsorten präsentiert.

Das Ne-LiF(001)-Potential wurde im Bereich thermischer Energien bereits untersucht. Dafür wurden sowohl die klassischen Regenbögen [145, 146, 326, 345] als auch die Beugungsmaxima [186, 189] bei Streuung von Ne-Atomen mit thermischen Energien ausgewertet. In den jeweiligen Modellen zur Interpretation der Daten wurde aber der

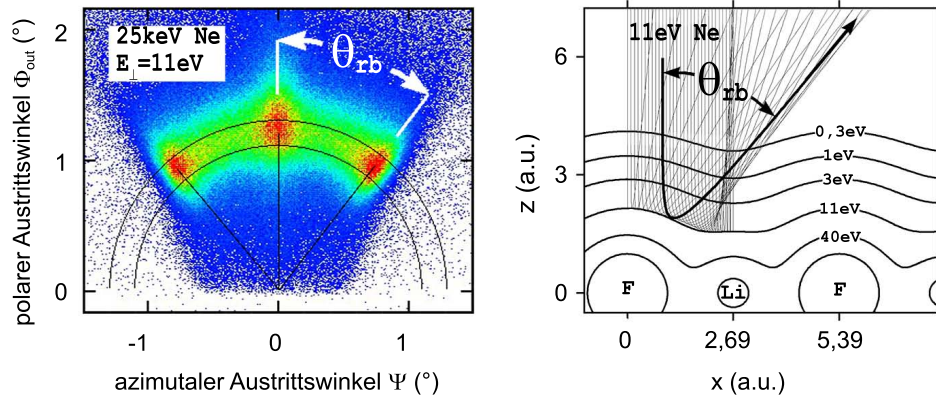


Abb. 5.59: links: Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Intensitätsverteilung für Streuung von Ne-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_0 = 25$ keV unter $\Phi_{\text{in}} = 1,2^\circ$ ($E_{\perp} = 11$ eV). Rechts: Trajektorien aus der korrespondierenden klassischen Simulation für Ne-Atome mit $E_{\perp} = 11$ eV und Skizze der Äquipotentiallinien des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Ne-LiF(001)-Potentials aus der Superposition von Ne-Li $^{+}$ - und Ne-F $^{-}$ -HF-Paarpotentialen. Der Regenbogenwinkel θ_{rb} ist jeweils markiert.

Beitrag der Li $^{+}$ -Ionen zum Gesamtpotential ignoriert bzw. lediglich eine korrigierte harte Wand abgeleitet, die die gleichen Beugungsmaxima erzeugt, aber kaum Rückschlüsse auf das tatsächliche „weiche“ Potential erlaubt. Für Energien im Bereich von einigen 10 eV wurde das Ne-LiF(001)-Potential bislang noch nicht untersucht.

In Abb. 5.59 ist links eine Intensitätsverteilung abgebildet, wie sie mit dem MCP-Detektor bei Streuung von Ne-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_0 = 25$ keV unter $\Phi_{\text{in}} = 1,2^\circ$ aufgenommen wurde. Das entspricht einer Senkrechtenenergie von $E_{\perp} = 11$ eV. Inelastische Effekte treten unter diesen Bedingungen praktisch nicht auf [62]. Die Regenbogenmaxima beim Ablenkwinkel θ_{rb} am Rand der Verteilung sind wohldefiniert. Auf der rechten Seite sind Trajektorien aus der korrespondierenden klassischen Simulation für Streuung von Ne mit $E_{\perp} = 11$ eV in der zur $\langle 110 \rangle$ -Richtung senkrechten Ebene skizziert. Die dick gezeichnete Trajektorie repräsentiert die Streuung unter maximalem Ablenkwinkel, dem Regenbogenwinkel θ_{rb} . Weiterhin sind einige Äquipotentiallinien des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Ne-LiF(001)-Potentials aus der Superposition von Ne-Li $^{+}$ - und Ne-F $^{-}$ -HF-Paarpotentialen skizziert, auf der die Simulation beruht. Die Trajektorien mit Stoßparametern in der Nähe der Li-Atomkette, wo die Äquipotentialfläche sehr flach ist, werden kaum abgelenkt und erzeugen so das Intensitätsmaximum in der Mitte der Verteilung bei $\Psi = 0$ (links).

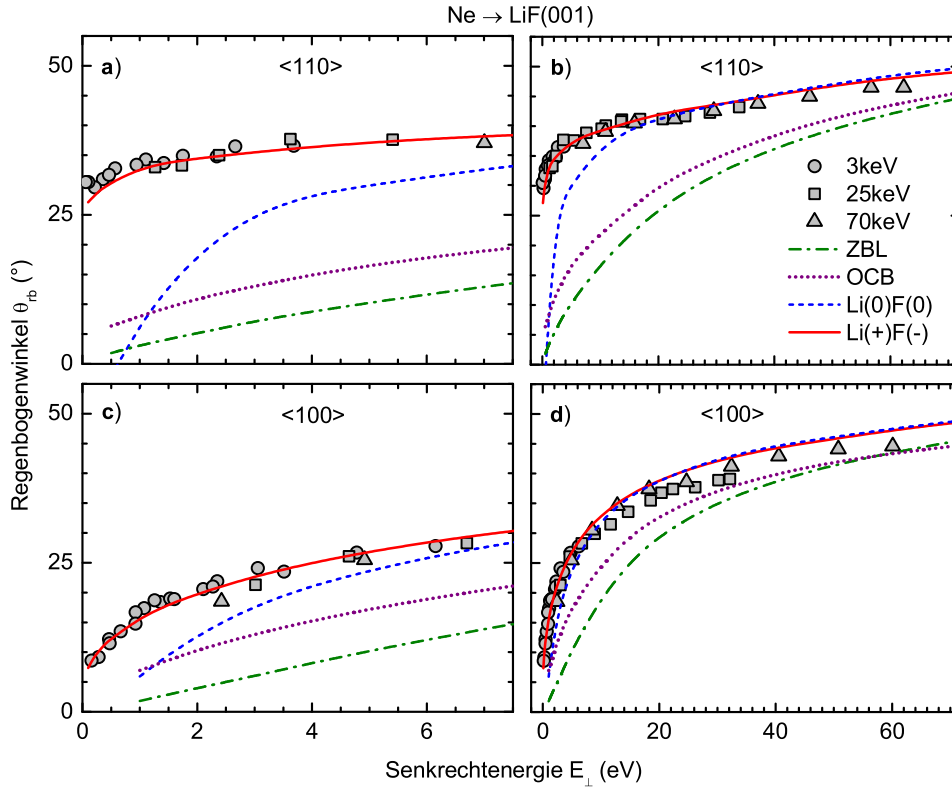


Abb. 5.60: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} für Streuung von Ne-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (oben) und einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (unten) mit Projektilenergien von $E_0 = 3$ keV (Kreise), 25 keV (Quadrate) und 70 keV (Dreiecke) im Vergleich mit den Ergebnissen der klassischen Trajektoriensimulation auf Basis des ZBL-Potentials (grüne Strich-Punkt-Kurve), des OCB-Potentials (gepunktete Kurve) und der individuell für Ne-Li⁰ und Ne-F⁰ (blau gestrichelte Kurve) bzw. für Ne-Li⁺ und Ne-F⁻ (rote durchgezogene Kurve) berechneten HF-Potentiale (Abb. 5.61). Die linken Felder zeigen einen vergrößerten Ausschnitt des Bereichs $E_{\perp} < 7,5$ eV.

In Abb. 5.60 sind die Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} für Streuung von Ne-Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (oben) und einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (unten) dargestellt (graue Symbole). Die linken Felder zeigen einen vergrößerten Ausschnitt des Bereichs $E_{\perp} < 7,5$ eV. Bei gegebener Senkrechterenergie E_{\perp} ist θ_{rb} unabhängig von der Projektilenergie, die Ergebnisse für $E_0 = 3$ keV (Kreise), 25 keV (Quadrate) und 70 keV (Dreiecke) unterscheiden sich im Rahmen der Streuung der Datenpunkte nicht. Die Kurven in Abb. 5.60 repräsentieren die Ergebnisse aus der Trajektoriensimulation für verschiedene Ne-LiF(001)-Potentiale, welche aus unterschiedlichen He-Li- und He-F- Paarpotentialen aufgebaut sind.

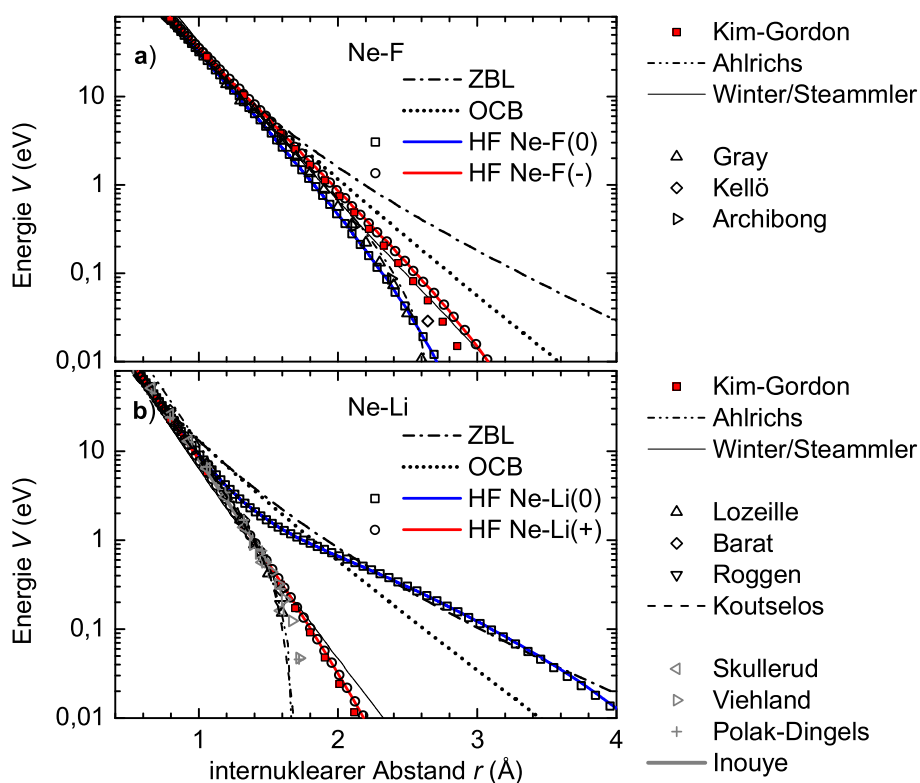


Abb. 5.61: a) Ne-F- und b) Ne-Li-Potentiale. ZBL [57] (Strich-Punkt), OCB [49] (gepunktet) und individuelle HF-Potential von Gärtner [54] für neutrales (offene Quadrate) und ionisches (offene Kreise) Li bzw. F mit jeweils Anpassung einer analytischen Funktion nach Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 5.3 (blaue bzw. rote Kurven). Zum Vergleich sind Werte aus der HF-Rechnung von Kim und Gordon [303] (rote Quadrate), Ahlrichs *et al.* [63] nach Gl. (2.15) (Strich-Punkt-Punkt) und aus der Anpassung von Paarpotentialen von Winter *et al.* an das Ne-LiF(001)-DFT-Potential von Staemmler [253] (dünn durchgezogen) gezeigt. Weiterhin sind theoretische Ne-F⁻-Potentiale von Gray [284], Kellö [346] und Archibong [321], theoretische Ne-Li⁺-Potentialen von Lozeille [347], Barat [348], Røgggen [349] und Koutselos [350] sowie experimentell ermittelte Ne-Li⁺-Potentialen von Skullerud [351], Viehland [297], Polak-Dingels [298] und Inouye [352] gezeigt.

In Abb. 5.61 werden die vier untersuchten Paarpotentiale, ZBL- (Strich-Punkt), OCB- (gepunktet) und individuell von Gärtner [54, 55] berechnete HF-Potentiale für neutrales (offene Quadrate) und ionisches (offene Kreise) Li bzw. F, miteinander verglichen. Die Parameter der nach Gl. (2.14) an die berechneten Punkte angepassten analytischen Funktion (blaue bzw. rote Kurven) sind in Tab. 5.3 angegeben. Zum Vergleich sind auch die Werte für Ne-Li⁺ bzw. Ne-F⁻ aus der HF-Rechnung von Kim und Gordon [303] (rote Quadrate), dem Potential von Ahlrichs *et al.* [63] nach Gl. (2.15) (Strich-Punkt-Punkt-Kurve) und

Tab. 5.3: Parameter für die analytische Funktion Gl. (2.14) zur Beschreibung der individuell berechneten Ne-Li- und Ne-F-HF-Potentiale von Gärtner [54, 55] im in Abb. 5.61 dargestellten Energiebereich.

	i	1	2	3	4
Ne-Li ⁰	a_i	1,83129	-1,58649	0,83922	-0,16252
	b_i	1,64832	1,16091	0,88217	0,71901
Ne-Li ⁺	a_i	-10,56817	15,76519	-5,52500	1,82264
	b_i	2,76251	2,47604	2,30654	5,42947
Ne-F ⁰	a_i	-0,29659	1,83519	0,28572	-1,49443
	b_i	2,52908	1,39515	1,09937	1,25219
Ne-F ⁻	a_i	1,77253	-2,61978	1,35863	-0,64813
	b_i	1,17253	1,19756	1,33948	3,38857

aus der Anpassung einer Superposition von Paarpotentialen von Winter *et al.* an das Ne-LiF(001)-DFT-Potential von Staemmler [253] (dünne durchgezogene Kurve) gezeigt. Weiterhin sind theoretische (schwarze Symbole) Ne-F⁻- [284, 321, 346] und Ne-Li⁺-Potentiale [347–350] sowie experimentell ermittelte (graue Symbole) Ne-Li⁺-Potentiale [297, 298, 351, 352] eingezeichnet.

Die Ne-Li⁺-HF-Potentiale (rot) stimmen sowohl mit den aktuellen Ab-initio-Rechnungen von Lozeille *et al.* [347] und Røggen [349] als auch mit den experimentell aus den Reichweiten von Li⁺-Ionen in Ne-Gas [297, 298, 351] (graue Symbole) bzw. der Streuung von keV Li⁺-Ionen an Ne-Atomen [352] (graue Kurve) abgeleiteten Potentialen überein. Erst ab $V(r) < 0,2$ eV weichen die Potentiale, die anziehende Beiträge durch Van-der-Waals-Kräfte und den induzierten Dipol berücksichtigen [63, 350] (gestrichelte und Strich-Punkt-Kurve) vom HF-Potential ab. Das Ne-Li⁰-HF-Potential (blau) ist im hier relevanten Energiebereich deutlich stärker als das Ne-Li⁺-HF-Potential. Das ZBL- und das OCB-Potential können zwar die Größenordnung, nicht aber die Kurvenform wiedergeben. Zur Näherung des Ne-Li⁺-HF-Potentials sind sie ungeeignet.

Das Ne-F⁻-Potential wurde bisher noch nicht experimentell untersucht. Die Ne-F⁻-HF-Potentiale von Gärtner bzw. Kim und Gordon (rot) weichen aufgrund der Vernachlässigung der anziehenden Kräfte für $V(r) < 1$ eV von den aktuellen Ab-initio-Potentialen von Gray *et al.* [284] und Archibong *et al.* [321] bzw. dem Potential von Ahlrichs *et al.* ab. Das Ne-F⁰-HF-Potential ist schwächer als das ionische Potential. ZBL- und OCB-Potential sind erst ab $V(r) > 5$ eV gute Näherungen.

Die Strich-Punkt-Kurve und die gepunktete Kurve in Abb. 5.60 repräsentiert das Ergebnis der Trajektorienimulation auf Basis des ZBL- bzw. des OCB-Potentials. Da die beiden generalisierten Potentiale sowohl für Ne-Li als auch für Ne-F im relevanten Energiebereich zu stark

sind, haben die Äquipotentialflächen des resultierenden Ne-LiF(001)-Potentials einen zu großen Abstand von der Oberfläche. Sie sind daher zu schwach korrigiert und es ergeben sich zu kleine Regenbogenwinkel. Die generalisierten Potentiale sind Näherungen für die Wechselwirkung zwischen neutralen Atomen und berücksichtigen nicht die charakteristischen Eigenschaften der jeweiligen Atomsorte. Mit den von Gärtner individuell für Ne-Li⁺ und Ne-F⁻ berechneten HF-Potentialen ergibt sich dagegen eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den simulierten Regenbogenwinkeln (rote Kurve). Das Rumpling (Abschn. 5.1.7) wurde hier vernachlässigt. Dies führt zu einer Unterschätzung von θ_{rb} um $< 2^\circ$. Andererseits ergibt sich z.B. für $\lambda_{\text{dB}\perp} = 0,023 \text{ \AA}$ (25 keV Ne mit $\Phi_{\text{in}} = 1^\circ$) aus der Näherung für den Quanten-Regenbogen $\theta_{m=0}$ nach Gl. (2.89) eine Überschätzung durch den klassischen Regenbogenwinkel nach Gl. (2.51) von 2° . Diese Abweichungen sind im Vergleich zu den Unterschieden zwischen den mit verschiedenen Potentialen berechneten Regenbogenwinkeln vernachlässigbar.

Um den Effekt der ionischen Natur des LiF-Kristalls auf das Wechselwirkungspotential zu studieren, wurde die gleiche Simulation auf Basis der von Gärtner für die Wechselwirkung von Ne mit neutralen Li- bzw. F-Atomen berechneten HF-Potentiale durchgeführt. Der sich ergebende Regenbogenwinkel ist in Abb. 5.60 als blau gestrichelte Kurve dargestellt. Da die neutralen Potentiale auf die gleiche Weise wie die ionischen berechnet wurden, resultieren alle Unterschiede nur aus dem unterschiedlichen Ladungszustand der Atome der Oberfläche. Bei höheren Senkrechtenergien E_\perp unterscheiden sich die Ergebnisse nicht von den mit ionischen Potentialen berechneten Regenbogenwinkeln. Mit abnehmendem E_\perp nehmen die Abweichungen jedoch zu. Die linke Seite von Abb. 5.60 zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des Bereich $E_\perp < 7,5 \text{ eV}$. Insbesondere für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung (oben) sind die Abweichungen beträchtlich. Für $E_\perp < 0,6 \text{ eV}$ wird θ_{rb} sogar negativ, da hier das Ne-Li⁰-Potential das Ne-F⁰-Potential übersteigt (Abb. 5.61), sodass sich das Maximum der entsprechenden Äquipotentialflächen bei einer Oberfläche aus neutralen Atomen über der Li-Kette statt über der F-Kette befindet. Auch bei der Streuung von He-, Ar- und Kr-Atomen zeigen sich bei kleinen E_\perp Abweichungen zwischen Simulation und Experiment, wenn statt der ionischen die neutralen HF-Potentiale verwendet werden. Der Ladungszustand der Atome der Oberfläche muss also bei Streuung mit Senkrechtenergien von $E_\perp \lesssim 10 \text{ eV}$ berücksichtigt werden.

Für das Kim-Gordon-Potential ist die Übereinstimmung mit dem Experiment ähnlich hoch. Das Modell von Kim und Gordon erfasst

jedoch nur die Wechselwirkung zwischen Atomen und Ionen mit abgeschlossenen Schalen, d.h. zwischen Edelgas-Atomen und Alkali- bzw. Halogen-Ionen. Ein Vergleich zwischen Potentialen, die sich nur durch den Ladungszustand unterscheiden, ist daher mit diesem Modell nicht möglich.

Die Superposition von HF-Paarpotentialen ist bei $E_{\perp} > 0,5 \text{ eV}$ eine gute Näherung. In Abb. 5.62 werden die Ergebnisse aus der 3D-Simulation von Gravielle [302] auf Basis des Ne-LiF(001)-DFT-Potentials von Steammler [253, 343] (gelbe Dreiecke) mit den Ergebnissen aus der selben Rechnung aber auf Basis von Ne-Li⁺- und Ne-F⁻-HF-Paarpotentialen (blaue Quadrate) verglichen. Die Ergebnisse stimmen gut überein. Es treten auch kaum Unterschiede zur klassischen Simulation in Kontinuumsnäherung auf (graue Kurven). Die von Winter *et al.* [253] durch Anpassung einer Superposition von Paarpotentialen an das Ne-LiF(001)-DFT-Potential von Steammler abgeleiteten Ne-F⁻- und Ne-Li⁺-Potentiale (dünne schwarze Kurven in Abb. 5.61) zeigen nur geringe Abweichungen zu den jeweiligen HF-Potentialen. Die Oberfläche als eine Anordnung freier ungestörter Ionen zu betrachten, ist hier also eine gute Näherung.

Bei der Streuung von Ne⁺-Ionen mit $E_0 = 3 \text{ keV}$ an LiF(001) werden ca. 80% der Ionen während des Streuprozesses nicht neutralisiert [353]. Eine Ionisation von Ne⁰-Atomen findet bei diesen Energie praktisch nicht statt. Die vom Detektor registrierten Ne⁺-Ionen waren also den ganzen Streuprozess über geladen. Da im Allgemeinen die Edelgas-Ionen vor einer Oberfläche neutralisieren, bietet sich hier die außergewöhnliche Möglichkeit, den Effekt der Coulombkräfte zwischen den Ionen der Oberfläche und einem Projektil-Ion anhand des Vergleichs der Regenbogenwinkel bei Streuung von Ne⁺-Ionen und Ne⁰-Atomen zu studieren. In erster Näherung sollten für Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung die anziehenden Coulomb-Kräfte zwischen der Nettoladung der F⁻-Ketten der Oberfläche und dem entgegengesetzt geladenen Ne⁺-Projektil die Abstoßung zwischen Projektil und F⁻-Ketten verringern, während umgekehrt die zusätzliche Abstoßung zwischen den Li⁺-Ketten und Ne⁺ das effektive Potential über den Li⁺-Ketten erhöht. Die Korrugation des effektiven Potentials wird auf diese Weise verringert, was einen kleineren Regenbogenwinkel im Vergleich zur Streuung neutraler Ne-Atome zur Folge hat. Bei Streuung entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung sollten sich die Effekte aufgrund der aus Li⁺- und F⁻-Ionen gemischten Ketten aufheben.

In Abb. 5.62 sind die Regenbogenwinkel bei der Streuung von Ne⁺-Ionen mit $E_0 = 3 \text{ keV}$ als roten Rauten dargestellt. Eine Variation der Projektilenergie ist nicht möglich, da schon bei $E_0 = 10 \text{ keV}$ ca. 60%

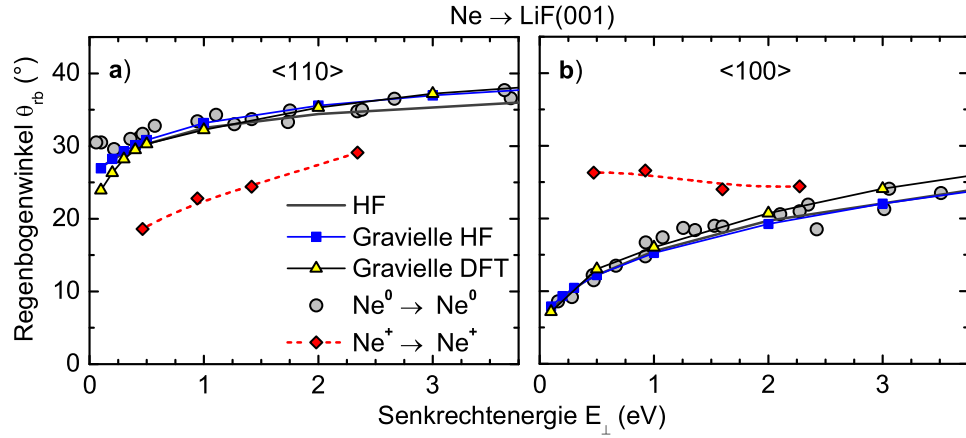


Abb. 5.62: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von Ne⁺-Ionen mit $E_0 = 3$ keV an LiF(001) entlang a) einer $\langle 110 \rangle$ - und b) einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (rote Rauten) im Vergleich mit der Streuung von neutralen Ne⁰-Atomen (graue Kreise). Die durchgezogenen grauen Kurven sind mit den durchgezogenen roten Kurven aus Abb. 5.60a bzw. 5.60c identisch. Zum Vergleich sind die Ergebnisse aus der 3D-Simulation von Gravielle [302] für Streuung von Ne⁰ auf Basis eines Potentials aus der Superposition von Ne-Li⁺- und Ne-F⁻-HF-Potentials (blauen Quadrate) sowie auf Basis des He-LiF(001)-DFT-Potentials von Staemmler (gelbe Dreiecke) eingezeichnet.

der Ne⁺-Ionen neutralisieren. Bei Streuung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung (links) sind die Regenbogenwinkel für Ne⁺ – wie erwartet – kleiner als bei Streuung neutraler Ne-Atome (graue Kreise). Bei Streuung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung (rechts) zeigt sich jedoch auch ein deutlicher Effekt. Hier ist θ_{rb} für Ne⁺ größer als für Ne⁰. Dies kann der Auswirkung der Bildladungswechselwirkung zugeschrieben werden, die nicht nur bei Metalloberflächen auftritt [58]. Die zu den um die Bildenergie erhöhte Senkrechtenergie korrespondierenden Äquipotentialflächen sind stärker korrigiert, dadurch ergibt sich ein im Vergleich zur Streuung von neutralen Ne-Atomen erhöhter Regenbogenwinkel.

Mit den jeweiligen ionischen HF-Potentials lassen sich die klassischen Regenbögen auch bei Streuung anderer Atome an LiF(001) gut beschreiben, wogegen die generalisierten Potentiale (ZBL, OCB) insbesondere bei kleinen Senkrechtenergien E_{\perp} Abweichungen zeigen. In Abb. 5.63 sind die Regenbogenwinkel θ_{rb} bei Streuung von He-Atomen im Vergleich mit den Ergebnissen der klassischen Simulation dargestellt. Die der Simulation zugrundeliegenden Paarpotentiale wurden bereits in Abschn. 5.1.5.2 diskutiert und auf S. 157 bzw. 159 mit experimentell ermittelten und Ab-initio-Potentials verglichen. ZBL- und OCB-Potential unterschätzen die experimentellen Datenpunkte deutlich. Der klassische Regenbogenwinkel aus der Simulation auf Basis der

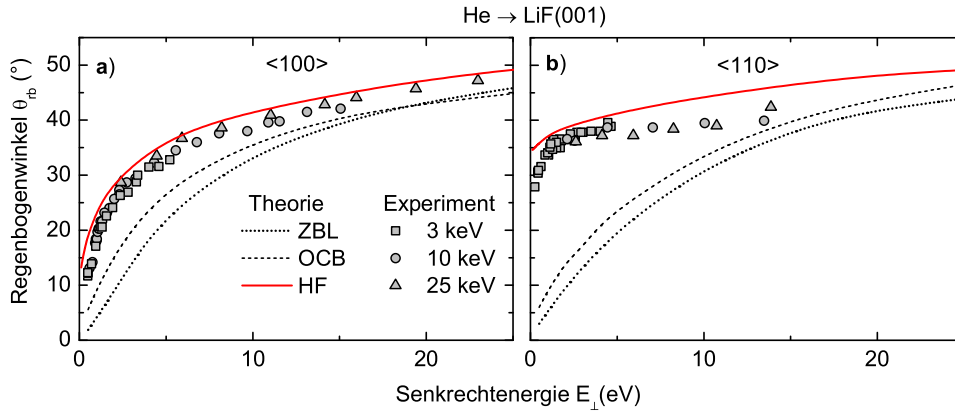


Abb. 5.63: Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von He-Atomen an LiF(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung (links) und einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (rechts) mit unterschiedlichen konstanten Projektilenergien E_0 als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} (Symbole). Kurven: Ergebnisse der klassischen Trajektoriensimulation auf Basis des ZBL- (gepunktet) und des OCB-Potentials (gestrichelt) sowie der von Gärtner für He-Li⁺ und He-F⁻ individuell berechneten HF-Paarpotentiale (rot durchgezogen).

He-Li⁺- und He-F⁻-HF-Potentiale ist etwas größer als der gemessene Regenbogenwinkel, denn das Maximum des Quanten-Regenbogens $m=0$ liegt bei größeren Senkrecht-Wellenlängen $\lambda_{dB\perp}$, d.h. leichten Projektilen wie He, einige Grad unterhalb des klassischen Regenbogenwinkels θ_{rb} (Abschn. 2.3.5). Bei Streuung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung dringen die He-Projektile ab $E_{\perp} \gtrsim 15$ eV in den Festkörper ein. Die Maxima in den Intensitätsverteilungen sind dann nicht mehr gut genug definiert, um ausgewertet werden zu können.

In Abb. 5.64 sind die Regenbogenwinkel bei Streuung von Kr-, Ar-, Cl- und N-Atomen mit Projektilenergien von $E_0 = 3$ keV bis 70 keV entlang einer $\langle 100 \rangle$ - (links) und einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (rechts) dargestellt. Überzählige Regenbögen treten bei Streuung von N- und Ar-Atomen erst unterhalb $E_{\perp} < 0,8$ eV bzw. 0,2 eV auf (nicht gezeigt). Bei der Streuung von Cl-Atomen mit $E_0 = 70$ keV werden ca. 60% der Projektile als Cl⁻-Ionen registriert. Daher wurden die geladenen Projektile nach der Wechselwirkung mit der Oberfläche mittels der Feldplatten hinter dem Target abgelenkt, um die Regenbogenmaxima mit ausschließlich neutralen Projektilen zu bestimmen. Innerhalb der experimentellen Unsicherheiten sind die Regenbogenwinkel bei gegebener Senkrechtenergie E_{\perp} unabhängig von der Projektilenergie E_0 . Das gilt insbesondere auch für die Streuung von N- und Cl-Atomen. Dies unterscheidet sich von den Experimenten an Al-Oberflächen (siehe Kap. 4). Bei der Streuung einiger reaktiver Atome wie N, Cl und S an Al(111) und Al(100) zeigte sich eine deutliche Abhängigkeit von E_0 [231, 251, 255] (siehe Abb. 4.5

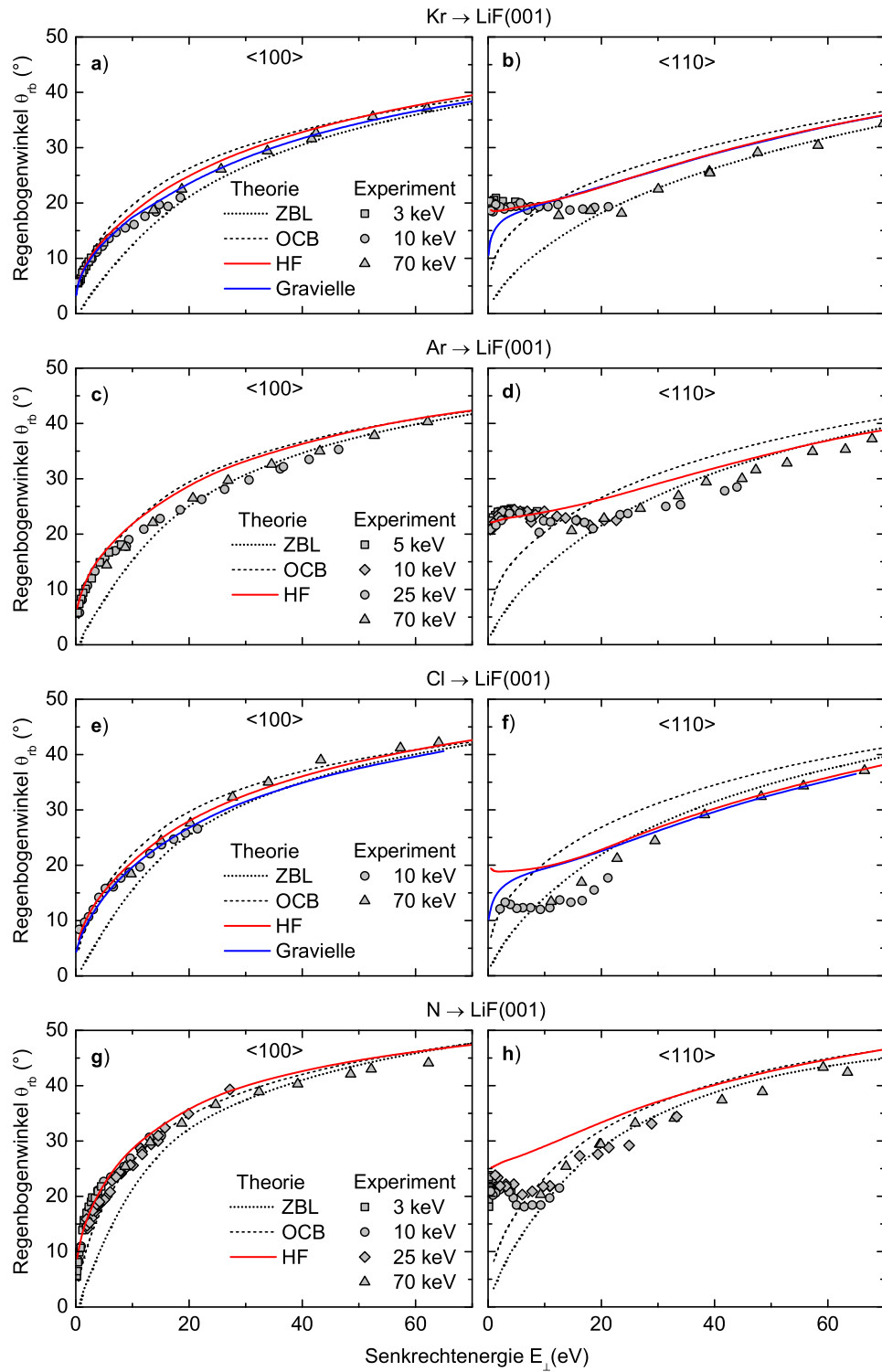


Abb. 5.64: Wie Abb. 5.63, jedoch für Kr, Ar, Cl, und N. Die blauen Kurven sind das Ergebnis der 3D-Simulation von Gravielle [302].

und 4.7).

Die Kurven in Abb. 5.64 sind das Ergebnis der klassischen Simulation auf Basis der Superposition von Paar-Potentialen. Die verschiedenen für das jeweilige System relevanten Paarpotentiale unterscheiden sich genauso wie bei He-Li⁺ in Abb. 5.28. In allen Fällen sind die generalisierten Potentiale keine gute Näherung bei großen Abständen. Die HF-Potentiale von Gärtner unterscheiden sich vom jeweiligen HF-Potential von Kim und Gordon [303] nur gering. Die Paarpotentiale von Inouye *et al.* aus der Streuung von Li⁺-Ionen mit Energien von einigen keV an Ar- bzw. Kr-Atomen [352] stimmen mit den jeweiligen HF-Paarpotentialen genau überein. Ab $V(r) \lesssim 1$ eV weichen die HF-Potentiale aufgrund der Vernachlässigung der anziehenden Beiträge von den theoretischen [347, 354–356] und den experimentell bestimmten [283, 298, 357] Ar-Li⁺-Potentialen ab, genauso wie bei Kr-Li⁺ [297, 298, 347] und Ar-F⁻ [63, 284, 325, 346]. Für Kr-F⁻ ist das HF-Potential im gesamten Abstandsbereich stärker als das Ab-initio-Potential von Gray *et al.* [284].

In allen Fällen werden die Regenbogenwinkel mit den HF-Paarpotentialen besser beschrieben als mit den generalisierten Potentialen. Für Streuung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung (rechts) ist θ_{rb} empfindlicher auf die Unterschiede zwischen den Potentialen als bei Streuung entlang der aus Li⁺- und F⁻-Ionen gemischten $\langle 100 \rangle$ -Ketten (links), bei denen sich Abweichungen der Paarpotentiale gegenseitig aufheben können. Die blauen Kurven in a und b bzw. e und f sind das Ergebnis der 3D-Simulation von Gravielle [302] mit HF-Potentialen unter der Berücksichtigung der Polarisation des Projektils. Unterschiede zur 2D-Simulation ohne Polarisation zeigen sich nur für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung bei kleinen E_{\perp} .

Eine Besonderheit ergibt sich bei der Streuung von S-Atomen. Die entsprechenden Regenbogenwinkel sind in Abb. 5.65 dargestellt. Während θ_{rb} bei Streuung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung – so wie bei den anderen Projektilsorten – monoton mit E_{\perp} steigt, treten bei Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung im Bereich um $E_{\perp} = 40$ eV zwei Regenbogenmaxima auf, ein äußerer (1. RB) und ein innerer Regenbogen (2. RB). Für größere/ kleinere Energien ist der innere/ äußere Regenbogen nicht gut genug definiert, um ihn auswerten zu können. Die zu $E_{\perp} = 40$ eV korrespondierenden Äquipotentialflächen des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten S-LiF(001)-Potentials weisen neben dem Maximum über der F-Kette ein lokales Maximum über der Li-Kette und ein Minimum dazwischen auf. Daher zeigt die Ablenkfunktion zwei Maxima mit unterschiedlichem $|\theta_{rb}|$. Der äußere Regenbogen stammt von der Streuung mit Stoßparametern in der Nähe der F-Ketten, wäh-

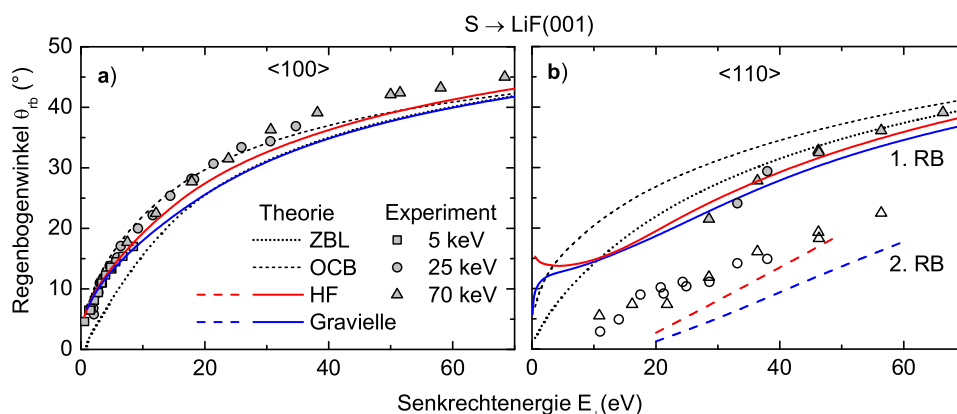


Abb. 5.65: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von S-Atomen an LiF(001) entlang a) einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung und b) einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Offene Symbole: innerer Regenbogen (2. RB). Kurven: Ergebnisse der klassischen Trajektoriensimulation auf Basis des ZBL- (gepunktet) und des OCB-Potentials (schwarz gestrichelt) sowie individuell berechneter S-Li⁺- und S-F⁻-HF-Potentiale (rot durchgezogene bzw. gestrichelt). Die blauen Kurven repräsentieren das Ergebnis der 3D-Simulation von Gravielle [302].

rend der innere Regenbogen durch die Streuung an den Li-Ketten verursacht wird. Der innere Regenbogen wird von den Simulationen qualitativ wiedergegeben (gestrichelte Kurven in Abb. 5.65b), er wird aber etwas unterschätzt. Das auftreten eines zweiten Regenbogens aufgrund der aus zwei Atomsorten bestehenden Oberfläche wird ausführlicher in Abschn. 5.2.9 anhand der Streuung von He- und Ne-Atomen an MgO(001) diskutiert.

Zusammenfassung: Zur Beschreibung der streifenden Streuung von Atomen an LiF(001) sind ZBL- und OCB-Potential keine adäquaten Näherungen. Das Potential vor der Oberfläche durch eine Superposition von HF-Paarpotentialen zu beschreiben, ist eine gute Näherung. Bei geringen Senkrechtenergien muss der Ladungszustand der Ionen der Oberfläche berücksichtigt werden. Die Ladung der Ionen der Oberfläche kann die Trajektorien von Projektil-Ionen beeinflussen.

5.2 MgO(001)

Um festzustellen, ob die Beugung schneller Atome auf LiF(001) beschränkt ist, oder ob es sich vielmehr um ein allgemeines Prinzip handelt, wurde mit MgO(001) eine weitere Isolator-Oberfläche untersucht. Bei der Streuung thermischer He-Atome an MgO(001) wurden wohldefinierte Beugungsmaxima bis zur Ordnung $n = 2$ beobachtet [190–194, 197, 358–360]. Daher konnte man auch bei der Beugung schneller Atome mehrere intensive Bragg-Maxima erwarten, falls die Kohärenz ausreicht, um Beugungseffekte überhaupt zu ermöglichen.

Allgemein ist MgO(001) von Interesse, weil sich auf dieser Oberfläche für eine große Anzahl verschiedener Metalle epitaktische dünne Filme herstellen lassen. Für unsere AG ist, aufgrund seiner besonderen magnetischen Eigenschaften, das System Fe/MgO(001) interessant [361]. Ein weiteres aktuelles System ist z.B. Ag/MgO(001) [362]. Außerdem dient MgO(001) als Substrat für Modell-Katalysatoren [363] und aufgrund der geringen Gitterfehlanpassung zu YBa₂Cu₃O₇ als Substrat für Hochtemperatur-Supraleiter [364].

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Experimente wurden in Zusammenarbeit mit David Blauth durchgeführt, die Auswertung der Daten erfolgte unter Mitwirkung von Jan Seifert.

5.2.1 Struktur und Präparation

MgO ist ein Ionenkristall mit NaCl-Struktur mit einer Gitterkonstanten von $a = 4,211 \text{ \AA}$ [192, 365, 366]. Die Ionen sind zweifach geladen [367]. Die MgO(001)-Fläche hat also die gleiche geometrische Struktur wie LiF(001) auf S. 118 in Abb. 5.1a, nur mit Mg²⁺ statt Li⁺ als Kation und O²⁻ statt F⁻ als Anion. Da O²⁻ als freies Ion nicht beobachtet wird, ist es möglich, dass die O-Ionen an der Oberfläche nur einfach geladen sind. Eine Verschiebung von Ladungen an der Oberfläche wird oft diskutiert [194, 367, 368]. Wie in Abschn. 5.1.10 am Beispiel Ne-LiF(001) gezeigt wurde, bestimmt der Ladungszustand der Ionen der Oberfläche das Potential und damit den Streuprozess. Theoretische Studien haben gezeigt, dass sich die Eigenschaften der O²⁻-Ionen der MgO(001)-Oberfläche nur gering von denen des Festkörpers unterscheiden. Es gibt kaum Ladungsverschiebungen [369, 370]; Bindung und Ionizität sind an der Oberfläche und im Festkörper praktisch gleich [369, 371].

MgO ist mit einer Bandlücke von 7,8 eV ein Isolator [372]. Eine Aufladung des Kristalls bei Bestrahlung mit Ionen, Atomen oder Elektronen ist daher nur schwer zu vermeiden [334]. Alle Streuexperimente wurden mit neutralen Projektilen durchgeführt, deren Trajektorien

nicht durch elektrische Felder beeinflusst werden.

Die MgO(001)-Oberfläche lässt sich durch Sputtern und Ausheilen bei Temperaturen von einigen 100 °C nicht ausreichend gut präparieren, um den Anforderungen für streifende Streuung zu genügen. Erst nach dem Heizen des Kristalls auf ca. 1500 °C mittels eines Elektronenstoßheizers für ca. zwei Minuten zeigen sich schmale, wohl definierte Streuverteilungen, die auf Terrassenbreiten der Oberfläche von mehreren hundert Å hindeuten [177, 373]. Nakamatsu *et al.* [374] konnten beobachten, dass bei ca. 1400 °C die MgO(001) Fläche ausheilt, was Zhou *et al.* bestätigten [334]. Robach *et al.* heilten MgO(001) mit Temperaturen zwischen 1500 °C und 1600 °C aus [375].

Die Präparation der MgO(001)-Fläche wurde von David Blauth im Rahmen seiner Promotion durchgeführt und in Ref. [373] detailliert beschrieben. Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES) nach dem Heizen ergab keine Hinweise auf Verunreinigungen. Die von verschiedenen Gruppen berichtete Segregation von Ca-Fremdatomen aus dem Festkörper zur Oberfläche [334, 375] wurde nicht beobachtet. Das aus den Auger-Elektronenspektren bestimmte Verhältnis von O zu Mg entsprach nicht ganz dem stöchiometrischen Verhältnis. Ohne eine Referenzmessung, z.B. an einem im Vakuum gespaltenen MgO Kristall, ist aber nicht zu entscheiden, ob dies eine Folge der hohen Temperaturen oder nur ein Artefakt der AES-Messung z.B. in Folge von Aufladungseffekten ist. Das vorgeschlagene Ausheilen unter Zugabe von O₂-Gas [375, 376] änderte das Verhältnis nicht.

5.2.2 Winkelposition der Beugungslinien

Wie schon bei der Streuung an LiF(001) zeigen sich auch bei MgO(001) für leichte Projektile wie H₂ und He wohldefinierte Beugungslinien bei geringer Senkrechterenergie. In Abb. 5.66a ist als Beispiel eine Streuverteilung von H₂-Molekülen bei der Streuung an MgO(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung gezeigt. In der Projektion der Intensität auf den azimuthalen Austrittswinkel Ψ in Abb. 5.66c sind 9 Bragg-Reflexe $-4 \leq n \leq 4$ zu erkennen. Im Unterschied zur Streuung an LiF(001) (vergl. Abb. 5.3 auf S. 121) zeigen sich bei der Streuung von H-Atomen an MgO(001) auch unter sehr kleinem Einfallswinkel keine Beugungslinien sondern nur eine sehr diffuse, breite Verteilung. Die in Abb. 5.66b dargestellte Verteilung von H-Atomen wurde unter identischen Bedingungen wie bei der Messung der H₂-Verteilung aus Abb. 5.66a aufgenommen. Da bei Streuung von H-Atomen an LiF(001) die Beugungslinien umso schmaler sind, je geringer die Wahrscheinlichkeit für elektronische Anregungen ist (vergl. Abb. 5.15 mit 5.7), ist anzunehmen, dass bei Streuung von H-Atomen an MgO(001) solche Anregungsprozesse schon bei sehr

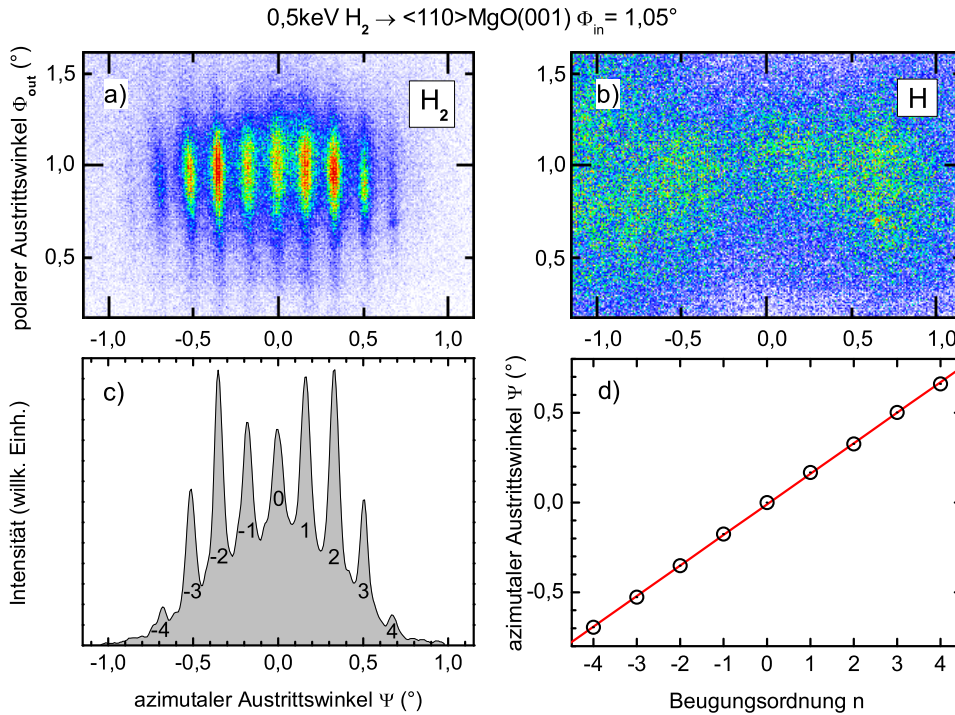


Abb. 5.66: **a)** Beugungsmuster bei der Streuung von H_2 -Molekülen an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit $E_0 = 0,5\text{ keV}$ unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 1,05^\circ$. **b)** Verteilung für Streuung von H-Atomen unter den selben Bedingungen wie in a). **c)** Projizierte Intensität aus a) als Funktion des azimuthalen Austrittswinkels Ψ . Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n . **d)** Winkelposition Ψ der Beugungsmaxima als Funktion von n . Rote Gerade: beste Anpassung einer linearen Funktion.

kleinen E_0 und Φ_{in} auftreten, bei Streuung von H_2 -Molekülen jedoch nicht.

Der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ ist bei fester Wellenlänge λ_{dB} unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} . In Abb. 5.67a und b werden die Beugungsmuster für Streuung von ^3He bei konstanter Energie $E_0 = 0,5\text{ keV}$ für $\Phi_{\text{in}} = 1,07^\circ$ und $\Phi_{\text{in}} = 0,62^\circ$ gezeigt. In Abb. 5.67c sind die Projektionen der Intensität auf die Achse des Austrittswinkels Ψ dieser beiden Verteilungen zusammen mit der Projektion einer dritten Verteilung für $\Phi_{\text{in}} = 0,88^\circ$ dargestellt. Die Position der Maxima der Ordnung $n = 1$ für $\Phi_{\text{in}} = 0,62^\circ$ und $\Phi_{\text{in}} = 0,88^\circ$ fallen genauso zusammen, wie die Position der Maxima der Ordnung $n = 2$ für $\Phi_{\text{in}} = 0,88^\circ$ und $\Phi_{\text{in}} = 1,07^\circ$. Die unterschiedliche relative Intensität der Maxima wird in Abschn. 5.2.4 noch im Detail diskutiert.

Aus dem Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} lässt sich die Breite der Gitterführungs Kanäle von

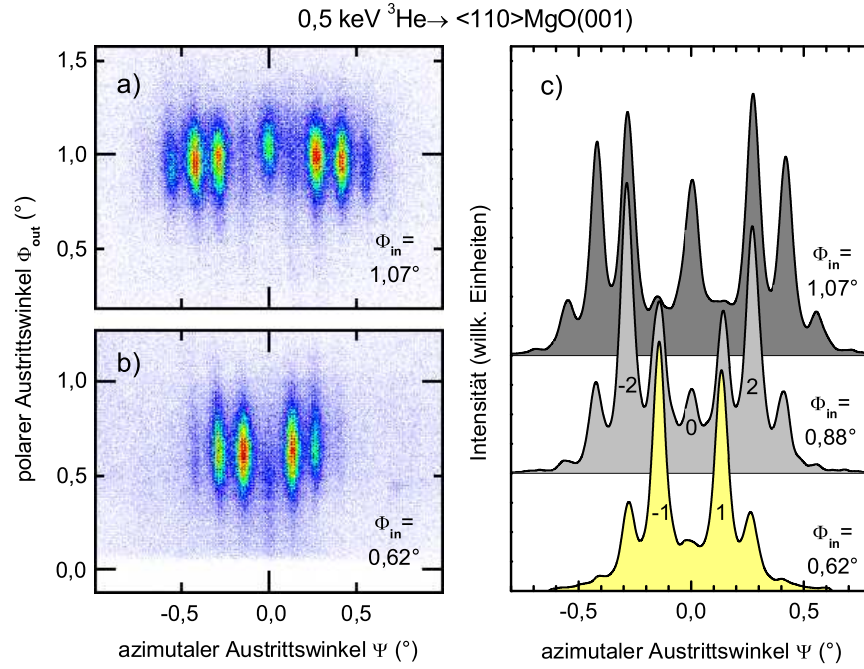


Abb. 5.67: Beugungsmuster bei der Streuung von ^3He -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit konstanter Projektilenergie $E_0 = 0,5$ keV unter verschiedenen Einfallswinkeln. Intensitätsverteilung für a) $\Phi_{\text{in}} = 1,07^\circ$ und b) $\Phi_{\text{in}} = 0,62^\circ$ und c) projizierte Intensität aus a), b) und für $\Phi_{\text{in}} = 0,88^\circ$ als Funktion vom azimuthalen Austrittswinkel Ψ . Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n .

$\text{MgO}(001)$ bestimmen. Analog zum Verfahren bei $\text{LiF}(001)$ wurde dafür in den Beugungsmustern die Position der Maxima als Funktion der Beugungsordnung n bestimmt. Abb. 5.66d zeigt die Position der Maxima der an die in Abb. 5.66c gezeigten Bragg-Reflexe angepassten Gauß-Kurven. Der Anstieg der besten linearen Anpassung entspricht dem durchschnittlichen $\Delta\Psi$.

In Abb. 5.68 ist $\Delta\Psi$ als Funktion von λ_{dB} aufgetragen. Jeder Datenpunkt entspricht einer Streuverteilung wie Abb. 5.66a bei der der mittlere Abstand benachbarter Maxima $\Delta\Psi$ aus dem Anstieg von $\Psi(n)$ (Abb. 5.66d) ermittelt wurde. Die Datenpunkte folgen sehr genau dem linearen Zusammenhang Gl. (5.2). Aus dem Anstieg s der Anpassung einer linearen Funktion mit der Nebenbedingung den Koordinatenursprung zu schneiden, ergibt sich die Breite des Gitterführungschanals zu $d = 180^\circ/s\pi$. Die Ergebnisse für beide Richtungen werden in Tab. 5.4 aufgeführt und mit den theoretischen Werten verglichen. Die theoretische Breite d ist dabei der Abstand benachbarter äquivalenter Atomketten, d.h. für $\langle 110 \rangle$ von O^{2-} -Kette zur nächsten O^{2-} -Kette und nicht von der O^{2-} -Kette zur Mg^{2+} -Kette.

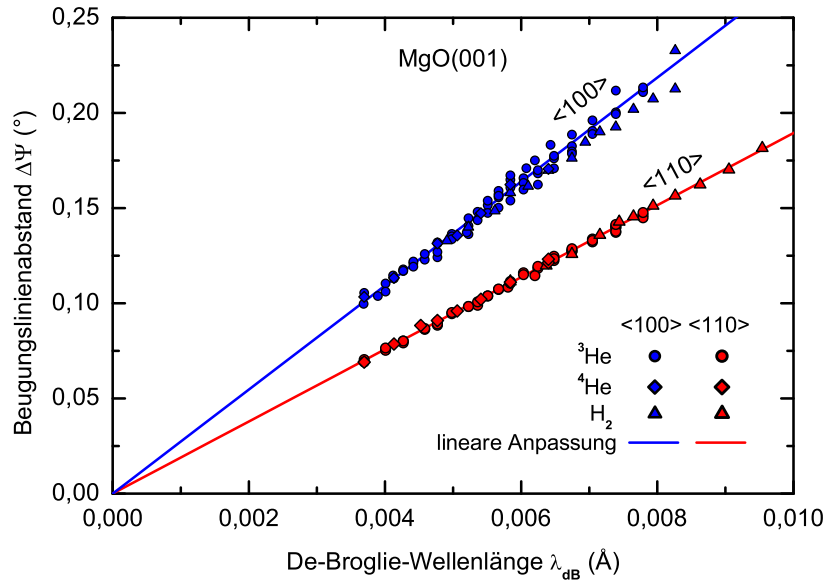


Abb. 5.68: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} für Beugung von ^3He - (Kreise) und ^4He -Atomen (Rauten) sowie H_2 -Molekülen (Dreiecke) an $\text{MgO}(001)$ bei Streuung entlang $\langle 110 \rangle$ - (rot) und $\langle 100 \rangle$ -Richtung (blau). Geraden: beste Anpassung von linearen Funktionen.

Die Anpassung der Regressionsgeraden an die Punkte in Abb. 5.68 erfolgte mit einer Wichtung proportional zur jeweiligen Anzahl der ausgewerteten Beugungsmaxima. Bei Streuung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung treten deutlich weniger Beugungsordnungen auf ($n \leq 4$) als bei $\langle 110 \rangle$ ($n \leq 8$). Während bei $\langle 110 \rangle$ immer mindestens fünf Maxima ausgewertet werden konnten, basieren viele der Datenpunkte für $\langle 100 \rangle$ (blaue Symbole) auf lediglich drei Maxima. Daher streuen diese deutlich stärker um die Regressionsgerade als bei $\langle 110 \rangle$ (rote Symbole). Die sich aus dieser Schwankung ergebende statistische Unsicherheit ist aber in beiden Fällen um mehr als eine Größenordnung kleiner als die systematische Unsicherheit, die sich aus der begrenzten Genauigkeit des MCP-Detektors bezüglich des azimuthalen Winkels Ψ ergibt (Abschn. 3.1.3.3,

Tab. 5.4: Breiten der Gitterführungskanäle von $\text{MgO}(001)$. Anstieg s der Regressionsgeraden aus Abb. 5.68 für $\langle 110 \rangle$ - und $\langle 100 \rangle$ -Richtung, Breiten der Gitterführungskanäle $d_{\text{exp}} = 180^\circ/s\pi$ und theoretische Breiten d_{cal} . In der letzten Spalte ist das Verhältnis vom gemessenen zum theoretischen Wert angegeben.

MgO(001)	s ($^\circ/\text{\AA}$)	d_{exp} (\AA)	d_{cal} (\AA)	$d_{\text{exp}}/d_{\text{cal}}$
$\langle 110 \rangle$	$18,9 \pm 0,6$	$3,02 \pm 0,09$	$g/\sqrt{2} = 2,978$	$1,02 \pm 0,03$
$\langle 100 \rangle$	$27,3 \pm 0,8$	$2,10 \pm 0,06$	$g/2 = 2,106$	$1,00 \pm 0,03$

S.82). Die in Tab. 5.4 angegebenen Vertrauensbereiche werden hauptsächlich durch diese Unsicherheit bestimmt.

Zusammenfassung: Die Übereinstimmung zwischen den experimentell bestimmten und den theoretischen Breiten der Gitterführungskanäle zeigt, dass es sich bei den Beugungslinien um Bragg-Reflexe handelt, wobei die Atom-Ketten der Oberfläche wie ein Beugungsgitter wirken. Damit wurde gezeigt, dass es sich bei der Beugung schneller Atome nicht um ein auf LiF(001) beschränktes Phänomen handelt, sondern dass wahrscheinlich bei allen Isolatoroberflächen solche Beugungseffekte prinzipiell beobachtbar sein sollten.

Ganz aktuell haben in unserer AG Messungen zur Beugung schneller Atome an KCl(001) begonnen. Für diese Oberfläche werden deutliche Effekte erwartet, da aufgrund der mit $g = 6,28 \text{ \AA}$ gegenüber MgO und LiF um ca. 50% größeren Gitterkonstante auch die Korrugation des Potentials dieser Oberfläche größer ist, sodass auch bei kleinen Energien noch höhere Beugungsordnungen auftreten. Erste Messungen zeigen tatsächlich auch für die Streuung von He-Atomen an KCl(001) wohl definierte Beugungsmuster.

5.2.3 Übergang von Beugung zu klassischer Streuung

Wie bei LiF(001) können auch bei MgO(001) Beugungslinien nur innerhalb eines schmalen Bereichs kleiner Projektilenergien E_0 und Einfallswinkel Φ_{in} beobachtet werden. Bei zu großem E_0 bzw. Φ_{in} ist der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ zu klein bzw. die azimutale Breite der Beugungslinien w zu groß und es ergibt sich eine klassische Verteilung. Andererseits darf Φ_{in} auch nicht zu klein werden, damit bei gegebenem E_0 ($\Delta\Psi$) die Senkrechtenenergie E_{\perp} groß genug ist, um die Projektile an den korrigierten Äquipotentialflächen $V(x, z) = E_{\perp}$ in höhere Beugungsordnungen abzulenken (vergl. Abb. 5.67).

In Abb. 5.69 wird die azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien bei der Streuung von ^3He -Atomen an MgO(001) unter $\Phi_{\text{in}} \approx 1,1^\circ$ als Funktion von E_0 gezeigt. Dabei gleicht die azimutale Breite der Beugungslinie $n = 0$ bei der Streuung entlang einer beliebigen hochindizierten Richtung (gelbe Quadrate) auch in diesem Fall der mittleren Breite der Beugungslinien bei Streuung in Gitterführungsrichtung (gelbe Dreiecke). Die graue Kurve repräsentiert den theoretischen Abstand der Beugungslinien $\Delta\Psi(E_0)$ für die Streuung von ^3He -Atomen an den $\langle 110 \rangle$ -Atomketten von MgO(001) nach Gl. (5.2). Der Punkt A definiert die Grenze zwischen Beugung und „überwiegend klassischer Streuung“ (siehe Abschn. 5.1.3).

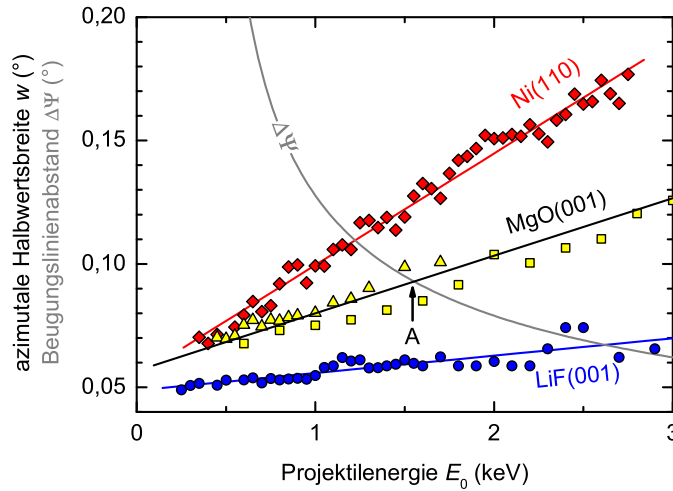


Abb. 5.69: Azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien als Funktion der Projektilenergie E_0 bei der Streuung von ^3He -Atomen an MgO(001) unter $\Phi_{\text{in}} = 1,1^\circ$ entlang einer beliebigen hochindizierten Richtung (gelbe Quadrate) und entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (gelbe Dreiecke) im Vergleich mit den Ergebnissen bei der Streuung an reinem Ni(110) unter $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ (rote Rauten) und LiF(001) unter $\Phi_{\text{in}} = 0,99^\circ$ (blaue Kreise). Die Geraden sind das Ergebnis der besten Anpassung einer linearen Funktion. Die graue Kurve repräsentiert den theoretischen Abstand der Beugungslinien $\Delta\Psi(E_0)$ für die Beugung von ^3He -Atomen an den $\langle 110 \rangle$ -Atomketten von MgO(001) nach Gl. (5.2). Der Punkt A definiert die Grenze zwischen Beugung und „überwiegend klassischer Streuung“.

Im Gegensatz zur Streuung von He-Atomen an LiF(001) (blaue Kreise) wird bei MgO(001) der Bereich von E_0 , in welchem die Beugungslinien noch voneinander getrennt sind, von der azimutalen Verbreiterung der Beugungslinien mit steigendem E_0 bestimmt. Die Bandlücke von MgO ist mit 7,8 eV [372] nur etwa halb so groß wie bei LiF mit 14,4 eV [269]. Außerdem zeigt MgO eine Reihe von Eigenschaften, wie man sie eher bei Halbleitern findet [377]. Daher könnten bei der Streuung an MgO(001) Kohärenz zerstörende elektronische Anregungsprozesse wahrscheinlicher sein als bei LiF(001), was die stärkere Verbreiterung mit E_0 erklären würde. Ein Vergleich mit der später noch ausführlich diskutierten Breite der Beugungslinien bei der Streuung von He-Atomen an Ni(110) (rote Rauten) zeigt aber, dass trotz größerem Einfallswinkel die Verbreiterung immer noch geringer ist als bei der Streuung an einer Metalloberfläche. Da aber Messungen zur Wahrscheinlichkeit von elektronischen Anregungen – so wie bei der Streuung von H-Atomen an LiF(001) in Abb. 5.17 – fehlen, kann aktuell nicht ermittelt werden, ob diese für den dominanten Beitrag zur Verbreiterung verantwortlich sind.

Da die Oberflächen-Debye-Temperatur von Mg(001) mit $\Theta_{\text{D}\perp} \approx$

540 K [192] nicht kleiner ist, als die von LiF(001) wo $\Theta_{D\perp} \approx 480$ K [378] bzw. $\Theta_{D\perp} \approx 330$ K [175] gemessen wurden, und da die Masse des Mg-Atoms im Vergleich zu Li größer ist, sind die thermischen Auslenkungen der Atome der MgO(001)-Oberfläche nach Gl. (2.43) geringer als bei LiF(001). Die größere Breite w bei MgO(001) im Vergleich zu LiF(001) ist mit einem inkohärenten Untergrund, der durch thermisch ausgelenkte Atome induziert wird [28], also nicht erklärbar.

Zusammenfassung: Der Übergang von Beugung zu klassischer Streuung vollzieht sich bei der Streuung von He-Atomen an MgO(001) im Vergleich zu LiF(001) bei geringeren Energien. Es gibt klare Indizien, dass für die Dekohärenz eher elektronische Anregungsprozesse als die thermischen Schwingungen der Atome der Oberfläche verantwortlich sind.

5.2.4 Intensität der Beugungsmaxima

Wie schon in Abb. 5.67 zu sehen war, hängt die Intensität der Bragg-Reflexe von der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB\perp}$ und damit vom Einfallswinkel Φ_{in} ab. So ist in Abb. 5.67a die Beugungsordnung $n=0$ fast völlig ausgelöscht, während $n=\pm 1$ intensiv sind. Bei höherem Φ_{in} und damit kleinerem $\lambda_{dB\perp}$ sind $n=\pm 1$ hingegen fast verschwunden, während $n=0$ Intensität aufweist. Diese Intensitätsmodulation lässt sich als Funktion der Projektilenergie E_0 auch für die Streuung entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung beobachten.

In Abb. 5.70 werden exemplarisch Beugungsmuster gezeigt, wie sie bei der Streuung von ^3He -Atomen an MgO(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung unter konstantem Einfallswinkel $\Phi_{in} = 1,37^\circ$ mit unterschiedlichem E_0 aufgenommen wurden. Es sind mehrere deutlich getrennte Beugungslinien erkennbar. Bei geringer Energie $E_0 = 0,40$ keV dominiert die Beugungsordnung $n=0$ bei $\Psi=0$ (Abb. 5.70a), während diese bei $E_0 = 1,10$ keV (Abb. 5.70c) ausgelöscht ist und $n=\pm 1$ intensiv sind. Um die Modulation der Intensität mit der Energie näher zu untersuchen, wurde die projizierte Intensität als Funktion des Ablenkungswinkels θ wie in Abb. 5.71 aufgetragen.

Die relative Intensität eines Bragg-Reflexes n wird hier definiert als die relative Fläche A_n der jeweiligen Lorentz-Kurve einer freien Anpassung der Superposition von Lorentz-Kurven an alle auftretenden Beugungsmaxima der projizierten Intensitätsverteilungen nach Gl. (5.6). Auf diese Weise wird die gesamte Intensität berücksichtigt¹². Dieser

¹²Die Gesamtintensität wird auf 1 normiert, sodass $\sum A_n = 1$

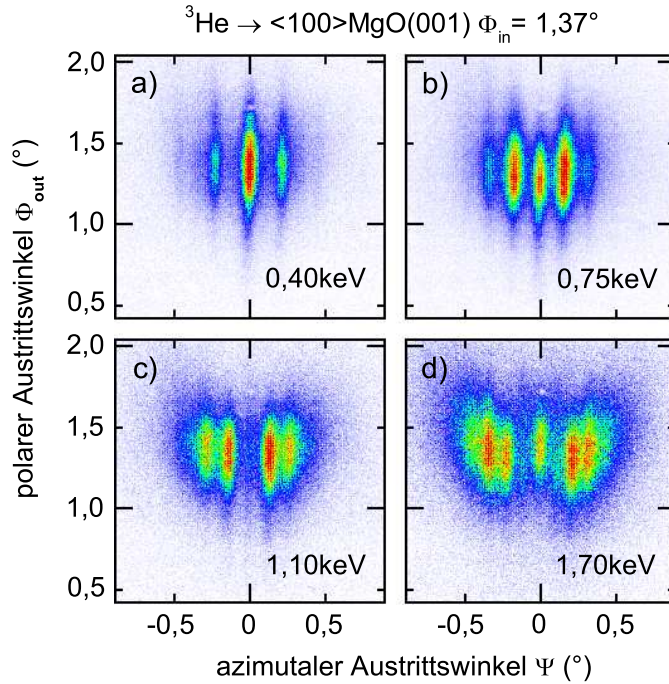


Abb. 5.70: Beugungsmuster bei der Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit a) $E_0 = 0,40 \text{ keV}$, b) $0,75 \text{ keV}$, c) $1,10 \text{ keV}$ und d) $1,70 \text{ keV}$ unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 1,37^\circ$.

Ansatz unterscheidet sich vom Vorgehen bei der Auswertung der Intensitätsmodulation bei der Streuung von He-Atomen an $\text{LiF}(001)$, wo nur die relative Intensität innerhalb eines konstanten Auswahlfensters bezüglich der Gesamtintensität bestimmt wurde (Abb. 5.23 und 5.21). Da die azimutale Breite w der Bragg-Reflexe aber mit wachsender Projektilenergie E_0 steigt (Abb. 5.69), wird deren Amplitude zusätzlich gedämpft. Andererseits tragen die Ausläufer der benachbarten Bragg-Reflexe mit steigendem w stärker zur Höhe der Intensität an der Position des betrachteten Reflexes bei. Letzterer Effekt nimmt auch dann mit E_0 zu, wenn w konstant bleibt, da der Abstand benachbarter Beugungslinien $\Delta\Psi$ mit E_0 abnimmt. Wenn man jedoch mit der jeweiligen Lorentz-Fläche $A_n = c_n w \pi / 2$ aus der Anpassung Gl. (5.6) die gesamte Intensität inklusive der Ausläufer einem Bragg-Reflex zuordnet und die Beiträge der benachbarten Reflexe auf diese Weise nicht berücksichtigt, dann ergibt sich ein auf 1 normierter Wert. Dieser kann dann direkt mit der theoretischen Intensität verglichen werden. Dadurch kann auf eine Dämpfungsfunktion, wie sie zur Optimierung der Anpassung in Abb. 5.23 und 5.21 nötig war, verzichtet werden.

In Abb. 5.72 ist die so definierte relative Intensität der Bragg-

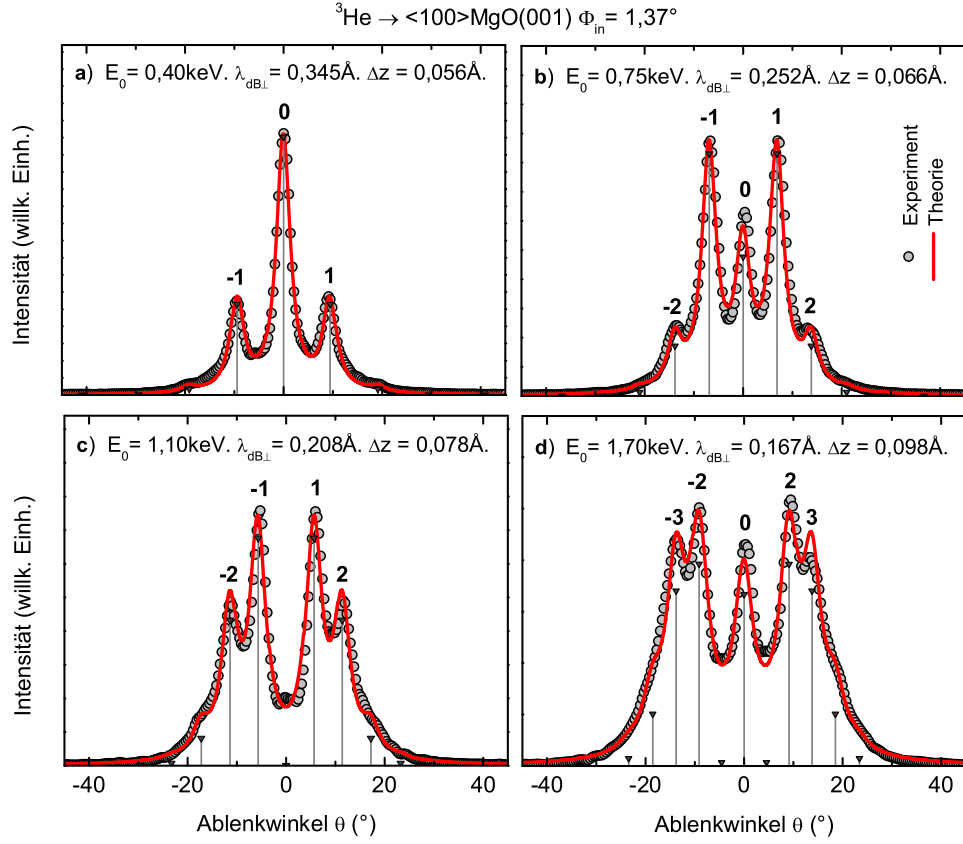


Abb. 5.71: Projizierte Intensität der in Abb. 5.70 gezeigten Verteilungen als Funktion vom Ablenkwinkel θ (graue Kreise) und Superposition von Lorentz-Kurven (rote Kurven) nach Gl. (5.8), wobei die grauen Balken sowohl die Position θ_n nach Gl. (2.61) als auch die Amplitude nach Gl. (2.76) jeder beitragenden Lorentz-Kurve kenntlich machen. Das Ergebnis der besten Anpassung der Korrugation Δz ist in jedem Feld angegeben. Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n .

Reflexe $n \leq 2$ für die Streuung von ^3He -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrecht-Wellenzahl $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\text{dB}\perp}$ dargestellt. Die Kurven repräsentieren das Ergebnis der korrelierten Anpassung der relativen Intensitäten von $n = 0$ und $n = 1$ in Harte-Wand-Näherung mit J_n^2 nach Gl. (2.78) unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit der Korrugation Δz von der Senkrechterenergie (E_{\perp}). Harte-Wand-Näherungen wurden auch bei der Streuung thermischer He-Atome an $\text{MgO}(001)$ angewandt [190–194, 358, 360], wobei die Analysen in Ref. [358] so wie hier auf dem Quadrat der Bessel-Funktionen J_n beruhen.

Die ermittelte Funktion $\Delta z/\text{\AA} = 0,042 + 0,057 E_{\perp}/\text{eV}$ für die beste Anpassung wird in Abb. 5.73 als blaue Gerade gezeigt. Mit dieser

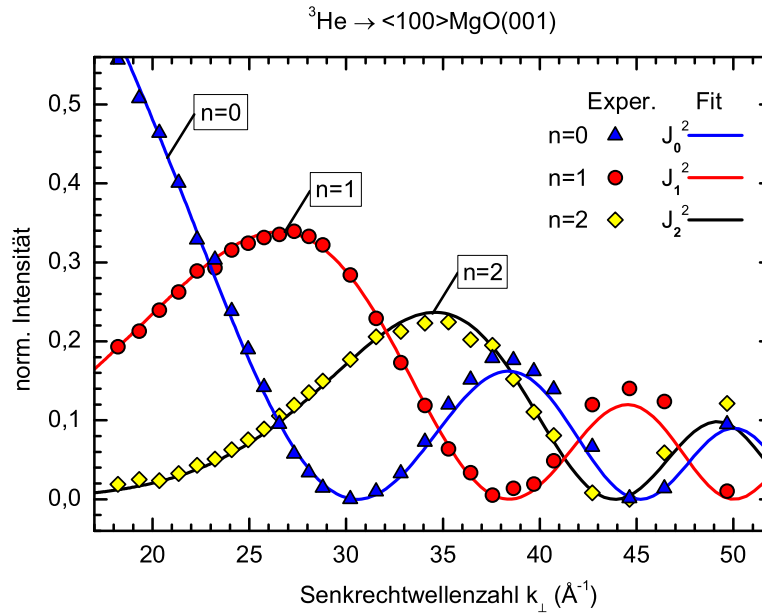


Abb. 5.72: Relative Intensität der Bragg-Reflexe $n \leq 2$ für die Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrechwellenzahl k_{\perp} (Symbole). Die Intensität ist definiert als die relative Fläche der jeweiligen Lorentz-Kurve A_n einer freien Anpassung einer Superposition von Lorentz-Kurven an die projizierten Intensitätsverteilungen wie in Abb. 5.71 nach Gl. (5.6). Kurven: Ergebnis der korrelierten Anpassung der theoretischen relativen Intensität von $n=0$ und $n=1$ in Harte-Wand-Näherung mit J_n^2 (Gl. (2.78)) unter Annahme einer linearen Abhängigkeit $\Delta z(E_{\perp})$ (blaue Gerade in Abb. 5.73).

Funktion ergibt sich auch für $n=2$ (gelbe Rauten bzw. schwarze Kurve und in Abb. 5.72) sowie $n=3$ und $n=4$ (nicht gezeigt) eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der gemessenen und der theoretischen relativen Intensität nach Gl. (2.78). Dies bedeutet, dass ein sinusförmiges Potential eine gute Näherung ist. Statt die Modulation der relativen Intensität von $n=0$ und $n=1$ auszuwerten, kann auch die relative Intensität aller Beugungsmaxima eines Beugungsmusters bei gegebenem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ über Gl. (5.8) durch Variation von Δz angepasst werden, analog zum Vorgehen bei $\text{LiF}(001)$ so wie in Abschn. 5.1.4 beschrieben und in Abb. 5.25 exemplarisch dargestellt.

Die roten Kurven in Abb. 5.71 repräsentieren die besten Anpassungen von Gl. (5.8) an die Messungen, wobei der Wert Δz mit der besten Übereinstimmung jeweils angegeben ist. Die grauen Balken machen sowohl die Position θ_n nach Gl. (2.61) als auch die Amplitude nach Gl. (2.76) der beitragenden Lorentz-Kurven kenntlich. Die Ergebnisse für Δz sind in Abb. 5.73 als Kreuze dargestellt. Die gute Übereinstimmung mit der blauen Gerade zeigt, dass sowohl die An-

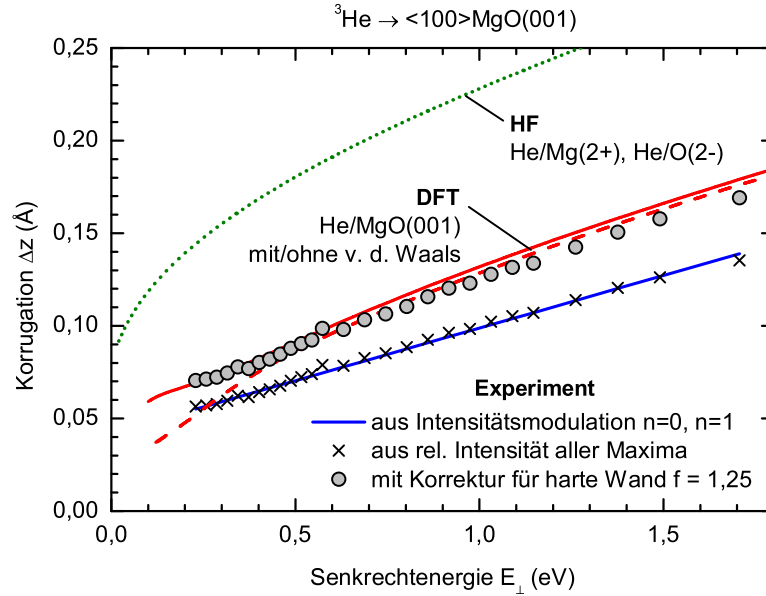


Abb. 5.73: Korrugation Δz des entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung gemittelten He-MgO(001)-Potentials. Blaue Gerade: beste Anpassung der Intensitätsmodulation der Ordnungen $n=0$ und $n=1$ aus Abb. 5.72. Kreise/Kreuze: beste Anpassung der relativen Intensität aller Bragg-Reflexe wie in Abb. 5.71 mit/ohne Korrektur hinsichtlich eines „weichen“ Potentials in Harte-Wand-Näherung. Rote durchgezogene/gestrichelte Kurve: mittels DFT von Sierka und Wlodarczyk [379] mit/ohne Berücksichtigung von Van-der-Waals-Kräften berechnetes He-MgO(001)-Potential. Grün gepunktete Kurve: Superposition von HF-Paarpotentialen für He-Mg $^{2+}$ und He-O $^{2-}$ (Abb. 5.77).

nahme einer linearen Funktion für $\Delta z(E_{\perp})$, als auch die Annahme des sinusförmigen Verlaufs der Äquipotentialflächen gute Näherungen im relevanten Energiebereich sind. Da aber die Δz mit E_{\perp} steigt, ist die in Harte-Wand-Näherung ermittelte Korrugation kleiner als die des wirklichen, weichen Potentials (siehe Abschn. 2.3.7). Im nächsten Abschnitt wird das He-MgO(001)-Potential besprochen und die Ableitung eines Korrekturfaktors erläutert. Zuvor werden noch die Ergebnisse für die Streuung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung vorgestellt.

In Abb. 5.74 werden die projizierten Intensitätsverteilungen für die Streuung von ${}^3\text{He}$ an MgO(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 0,88^\circ$ als Funktion des Ablenkwinkels θ gezeigt. Auch hier ist eine ausgeprägte Modulation der relativen Intensitäten der Beugungsreflexe zu beobachten. Während die Beugungsordnung $n=1$ bei $E_0 = 0,45$ keV in Abb. 5.74a relativ zu $n=0$ hohe Intensität aufweist, ist es bei $E_0 = 0,70$ keV in Abb. 5.74c genau umgekehrt. Die roten Kurven in Abb. 5.74 repräsentieren wieder die beste Anpassung von Gl. (5.8),

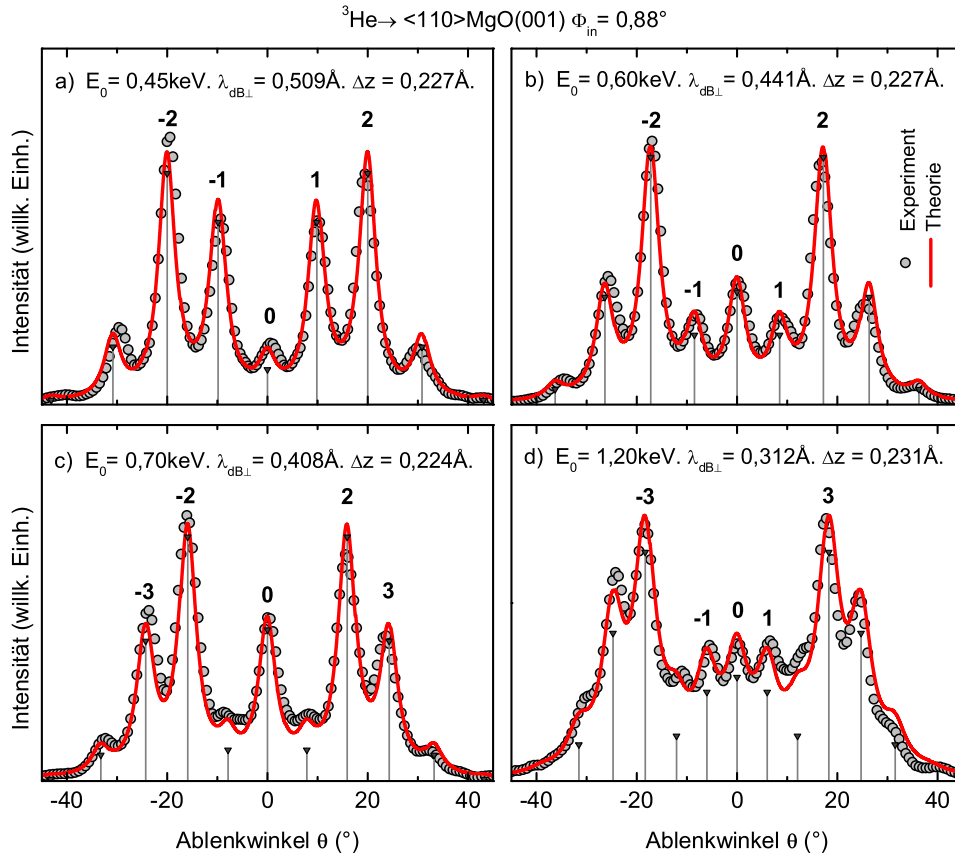


Abb. 5.74: Graue Kreise: Intensität als Funktion von θ für die Streuung von ${}^3\text{He}$ an $\text{MgO}(001)$ mit a) $E_0 = 0,45 \text{ keV}$, b) $0,60 \text{ keV}$, c) $0,70 \text{ keV}$ und d) $1,20 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0,88^\circ$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Rote Kurven: Überlagerung von Lorentz-Kurven nach Gl. (5.8) wobei die grauen Balken sowohl die Position θ_n nach Gl. (2.61) als auch die Amplitude nach Gl. (2.76) jeder beitragenden Lorentz-Kurve kenntlich machen. Das Ergebnis der besten Anpassung der Korrugation Δz ist in jedem Feld angegeben. Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n .

wobei der Wert Δz mit der besten Übereinstimmung jeweils angegeben ist. In Abb. 5.74d ist anhand der grauen Balken, welche die Position und Amplitude der Lorentz-Kurven markieren, besonders gut zu erkennen, dass die Intensität der Beugungsordnung $n = 2$ mehr als zur Hälfte durch die Ausläufer der Beugungsmaxima $n = 1$ und $n = 3$ bestimmt wird. Ein direkter Vergleich der Amplitude mit J_n^2 aus Gl. (2.76) ist also nicht möglich.

Die Ergebnisse der besten Anpassungen von Δz an die relativen Intensitäten aller Maxima bei der Streuung von ${}^3\text{He}$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung sind in Abb. 5.75 dargestellt (Kreise). Die Korrugation steigt kaum mit der Senkrechterenergie E_\perp , sodass die Korrekturen aufgrund

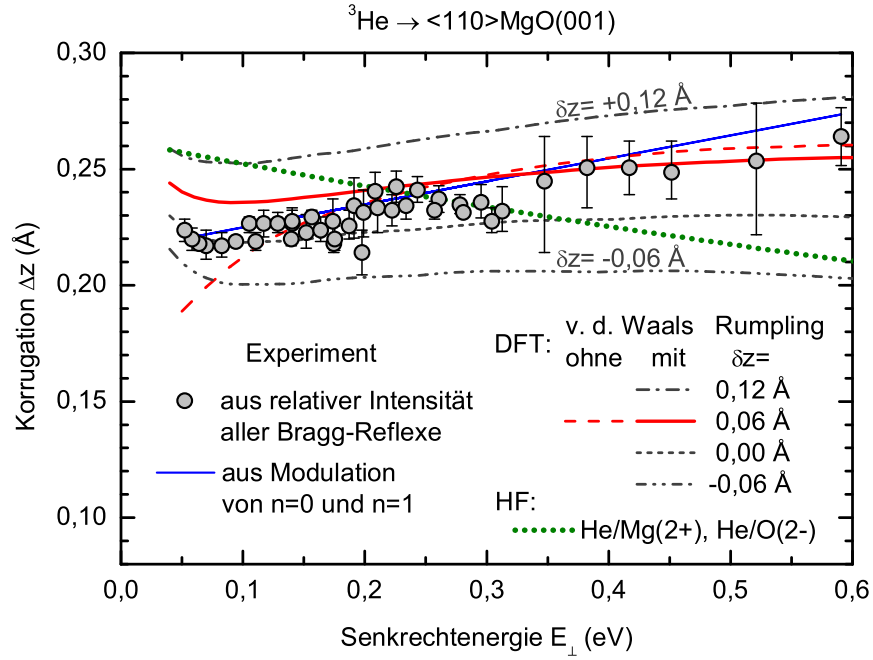


Abb. 5.75: Korrugation Δz des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten He-MgO(001)-Potentials. Kreise: beste Anpassung der relativen Intensität aller Bragg-Reflexe wie in Abb. 5.74. Blaue Gerade: besten Anpassung der Intensitätsmodulation der Ordnungen $n=0$ und $n=1$ aus Abb. 5.76a. Grün gepunktete Kurve: Superposition von He-Mg $^{2+}$ und He-O $^{2-}$ -HF-Potentialen (Abb. 5.77). Rote durchgezogene/gestrichelte Kurve: mittels DFT berechnetes He-MgO(001)-Potential mit/ohne Berücksichtigung von Van-der-Waals-Kräften. Graue Kurven: mittels DFT für verschiedene Rumpling-Werte δz berechnetes He-MgO(001)-Potential.

der Harte-Wand-Näherung vernachlässigbar sein sollten. Die in Abschn. 2.3.7 erläuterte Analyse auf der Basis des in Abschn. 5.2.5 vorgestellten He-MgO(001)-DFT-Potentials bestätigt diese Annahme. Die im Diagramm dargestellten Fehlerbalken repräsentieren den Wert, um den Δz geändert werden muss, um die quadratische Abweichung σ^2 von der idealen Anpassung zu verdoppeln (siehe Abb. 5.25). Sie sollen einen Eindruck von der Güte der Anpassung geben und stellen nicht die tatsächliche Messunsicherheit dar.

Statt die relative Intensität aller Beugungsreflexe anzupassen, kann auch die Modulation der Intensität der Beugungsordnung $n=0$ und $n=1$ mit $\lambda_{\text{dB}\perp}$ analysiert werden. Für die zu $n=0$ und $n=1$ korrespondierenden Trajektorien ist die Reflexion an einer harten Wand aufgrund der kleinen Ablenkwinkel $\theta_{n=0} = 0$ bzw. $\theta_{n=1} \approx 0$ eine bessere Näherung, als für die zu höheren Ordnungen korrespondierenden „gebogenen“ Trajektorien mit $\theta_n > 0$. In Abb. 5.76 sind die relativen Intensitäten der Beugungsordnungen $n=0$ bis $n=4$ aus der besten freien

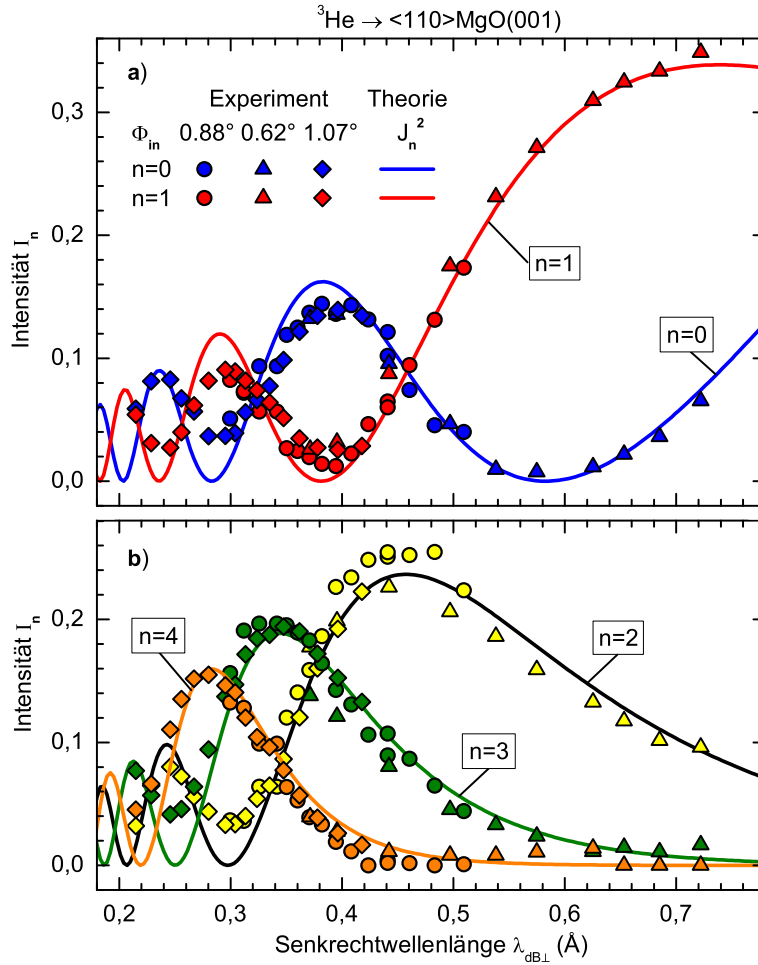


Abb. 5.76: Relative Intensität der Bragg-Reflexe $n \leq 4$ für die Streuung von ^3He -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang $\langle 110 \rangle$ als Funktion der Senkrechtwellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ für drei verschiedene Einfallswinkel Φ_{in} (Symbole). Kurven: Ergebnis der korrelierten Anpassung der theoretischen relativen Intensität von $n=0$ und $n=1$ in Harte-Wand-Näherung mit J_n^2 (Gl. (2.78)) unter Annahme einer linearen Abhängigkeit $\Delta z(E_\perp)$ (blaue Gerade in Abb. 5.75).

Anpassung einer Summe von Lorentz-Kurven an alle Beugungsmaxima der projizierten Intensitätsverteilung wie in Abb. 5.74 als Funktion der Senkrechtwellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ dargestellt (Symbole). Die Kurven repräsentieren das Ergebnis der korrelierten Anpassung der relativen Intensität von $n=0$ und $n=1$ in Harte-Wand-Näherung mit J_n^2 nach Gl. (2.78) unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit der Korruktion von der Senkrechterenergie $\Delta z(E_\perp)$. Die leichten Abweichungen der Datenpunkte von der theoretischen Kurve sind darauf zurückzuführen, dass eine Lorentz-Kurve das Profil der Beugungsmaxima zu grob

beschreibt. Die Position der Maxima und Minima wird dadurch aber nicht beeinflusst. Die ermittelte Funktion mit der besten Anpassung $\Delta z/\text{\AA} = 0,215 + 0,1E_{\perp}/\text{eV}$ wird in Abb. 5.75 als blaue Gerade gezeigt. Mit dieser Funktion ergibt sich auch für $n=2$ bis $n=4$ eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der gemessenen und der theoretischen relativen Intensität nach Gl. (2.76), wie in Abb. 5.76b zu sehen ist. Diese Ergebnisse werden im folgenden Abschnitt mit der Korrugation verschiedener Modelle des He-MgO(001)-Potentials verglichen.

Zusammenfassung: Die relative Intensität der Bragg-Reflexe und die Modulation ihrer Intensitäten mit der Senkrecht-De-Broglie-Wellenlänge lassen sich mit dem Modell einer sinusförmig korrugierten harten Wand beschreiben.

5.2.5 Das He-MgO(001)-Potential

Die aus den Beugungsmustern ermittelte Korrugation des effektiven He-MgO(001)-Potentials soll mit theoretischen und empirischen Potentialen verglichen werden, um deren Gültigkeit im für die Beugung schneller Atome relevanten Energiebereich zu testen. Dazu werden in diesem Abschnitt verschiedene Ansätze für ein He-MgO(001)-Potential vorgestellt.

Yinnon *et al.* [380] haben die Daten für die Beugung thermischer He-Atome an MgO(001) mit $E_{\perp} < 40$ meV aus Ref. [358] analysiert. Unter Anwendung einer Inversions-Prozedur leiteten diese Autoren aus der relativen Intensität der nullten und ersten Beugungsordnung ein weiches He-MgO(001)-Potential für diesen Energiebereich ab. Eine Extrapolation zu höheren Energien ist mit diesem Potential nicht möglich.

Ein Problem bei der Beschreibung des Potentials durch eine Superposition von Paarpotentialen ist der Ladungszustand der Ionen des Kristalls. Da die generalisierten Potentiale wie ZBL und OCB nur Näherungen für die Wechselwirkung von neutralen Atomen darstellen, sind diese Potentiale ungeeignet. Das ZBL-Potential für He-Mg ist z.B. kaum stärker als das für He-O (grüne Strich-Punkt-Kurve in Abb. 5.77). Es muss aber einen großen Unterschied geben, da die Kanalbreite d des $\langle 110 \rangle$ -Kanals (Tab. 5.4) und die starke Korrugation aus der Beugung entlang dieser Richtung nur den Schluss zulassen, dass sich über der einen Ionensorte das Minimum der Äquipotentialfläche und über der anderen das Maximum befindet. AFM-Bilder der MgO(001)-Fläche zeigen auch das eine Untergitter als Berge und das andere als Mulden [382]. Für die individuelle Berechnung der interatomaren Potentiale mittels HF werden die jeweiligen Wellenfunktionen

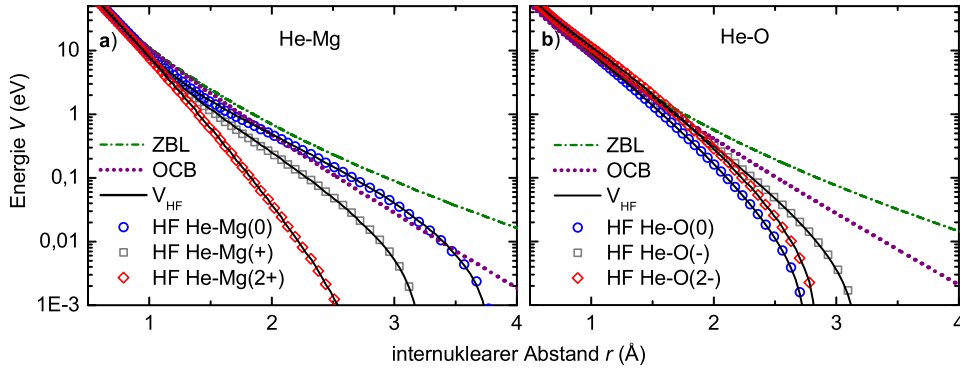


Abb. 5.77: Interatomare Potentiale für a) He-Mg und b) He-O. ZBL-Potential (grüne Strich-Punkt-Kurve), OCB-Potential (gepunktete Kurve), HF-Potential von Gärtner [54, 55] für die Wechselwirkung zwischen einem He-Atom und einem neutralen Mg- bzw. O-Atom (blaue Kreise), einem einfach geladenen Mg^+ - bzw. O^- -Ion (graue Quadrate) und einem zweifach geladenen Mg^{2+} - bzw. O^{2-} -Ion (rote Rauten). Letzteres basiert auf Wellenfunktionen für im MgO-Kristall eingebettete Ionen [381]. Die vollen schwarzen Kurven repräsentieren die jeweilige Anpassung einer analytischen Funktion V_{HF} nach Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 5.5.

benötigt. Da das freie O^{2-} -Ion aber instabil ist, gibt es hierfür keine standardmäßige Wellenfunktion. Daher wurden für die HF-Rechnungen die Wellenfunktionen für ein in ein MgO-Gitter eingebettetes Mg^{2+} -Ion bzw. O^{2-} -Ion aus Ref. [381] verwendet. Dabei unterscheidet sich die Wellenfunktion für Mg^{2+} im Kristall nur wenig vom freien Ion, während es bei O^{2-} deutliche Unterschiede gibt [381]. Die daraus von Gärtner [54, 55] berechneten HF-Potentiale (Rauten in Abb. 5.77) unterscheiden sich insbesondere für He-Mg^{2+} deutlich von den Potentialen für die Wechselwirkung zwischen neutralen Atomen (Kreise). Während für neutrale Atome das He-Mg^0 -Potential bei $V < 1$ eV stärker als das He-O^0 -Potential ist, ist es bei den zweifach geladenen Ionen genau umgekehrt. Für die Korrugation der He-MgO(001)-Äquipotentialflächen spielt der Ladungszustand also eine entscheidende Rolle.

An die berechneten Datenpunkte der verschiedenen individuellen HF-Potentiale wurden analytische Funktionen nach Gl. (2.14) angepasst, die in Abb. 5.77 als schwarze volle Kurven gezeigt sind und deren Parameter in Tab. 5.5 gegeben sind. In Abb. 5.75 und 5.73 wird die Korrugation Δz des jeweils entlang der $\langle 110 \rangle$ - bzw. der $\langle 100 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentials aus der Superposition von He-Mg^{2+} - und He-O^{2-} -HF-Potentialen (grün gepunktete Kurven) mit den Ergebnissen aus dem Experiment verglichen. Für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung in Abb. 5.75 wird zwar die Größe von Δz in guter Näherung vorhergesagt, jedoch zeigt sich eine unterschiedliche Tendenz, $\Delta z(E_{\perp})$ sinkt mit E_{\perp} im Gegensatz zum Experiment. Für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung in Abb. 5.73 stimmt

Tab. 5.5: Parameter für die analytische Funktion Gl. (2.14) zur Beschreibung der individuell berechneten He-Mg- und He-O-HF-Potentiale von Gärtner [54, 55] im in Abb. 5.77 dargestellten Energiebereich.

	i	1	2	3	4
He-Mg ⁰	a_i	-2,66	3,13	0,664	-0,0418
	b_i	1,46929	1,75830	1,06314	0,70721
He-Mg ⁺	a_i	-5,89	3,65	-2,28	5,90
	b_i	1,53728	1,96850	1,20773	1,31666
He-Mg ²⁺	a_i	-14,70	14,00	4,75	-1,20
	b_i	3,57143	4,16667	2,31857	2,05634
He-O ⁰	a_i	-2,15148	-9,41497	7,88587	5,79838
	b_i	1,56348	2,25749	1,79051	3,09109
He-O ⁻	a_i	-7,13300	1,41520	7,50770	-0,00935
	b_i	2,58920	1,58103	2,94890	0,75204
He-O ²⁻	a_i	-14,47261	-67,14983	42,97183	40,62280
	b_i	1,67244	2,18055	2,40177	1,82349

zwar die Tendenz, dafür wird der Betrag von Δz ca. zweifach überschätzt. Die Berücksichtigung eines Rumplings ändert dies nicht. Dieses Potential ist jedoch eine deutlich bessere Näherung als die Potentiale auf Basis der generalisierten Paarpotentiale bzw. der HF-Potentiale für neutrale Atome. Die Abweichungen sind wahrscheinlich ein Effekt der Grenze vom Festkörper zum Vakuum, denn auch, wenn die Wellenfunktionen aus Ref. [381] die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen im Kristall korrekt beschreiben, muss das nicht auch an der Oberfläche der Fall ist. Eine Verformung der Elektronenwolke [367] bzw. eine Ladungsverschiebung an der Oberfläche [194] ist nicht auszuschließen. Zur Abschätzung der Auswirkungen wurden auch noch die Potentiale für einfach geladene Ionen berechnet (Quadrate in Abb. 5.77). Im direkten Vergleich in Abb. 5.77 ist zu erkennen, dass es im für die Beugung relevanten Bereich $V < 1$ eV vor allem für die He-Mg-Wechselwirkung sehr auf die Ionizität ankommt. Im Modell von Sangster [383] wird z.B. statt der zweifachen Ladung eine Ionizität von 1,918 als beste Anpassung für MgO abgeschätzt. Als weitere Ursachen für die Abweichungen kommen noch die Polarisierung des He-Atoms im Feld der Ionen der Oberfläche [300] oder die Vernachlässigung der Van-der-Waals-Kräfte in Frage.

Sowohl die Elektronendichte an der Oberfläche als auch die Polarisierung des Projektils werden in einem Projektil-Oberfläche-Potential aus DFT-Rechnungen standardmäßig berücksichtigt. Van-der-Waals-Kräfte können im Allgemeinen mit DFT nicht beschrieben werden [384]. Aktuelle Theorien [385, 386] sollen das inzwischen leisten können. Andererseits ist unklar, ob sich überhaupt Van-der-Waals-Kräfte aufbauen können, wenn sich das Projektil mit Energien von keV par-

$$\text{He-MgO(001)} \quad V(x, y, z) = 0,4 \text{ eV}$$

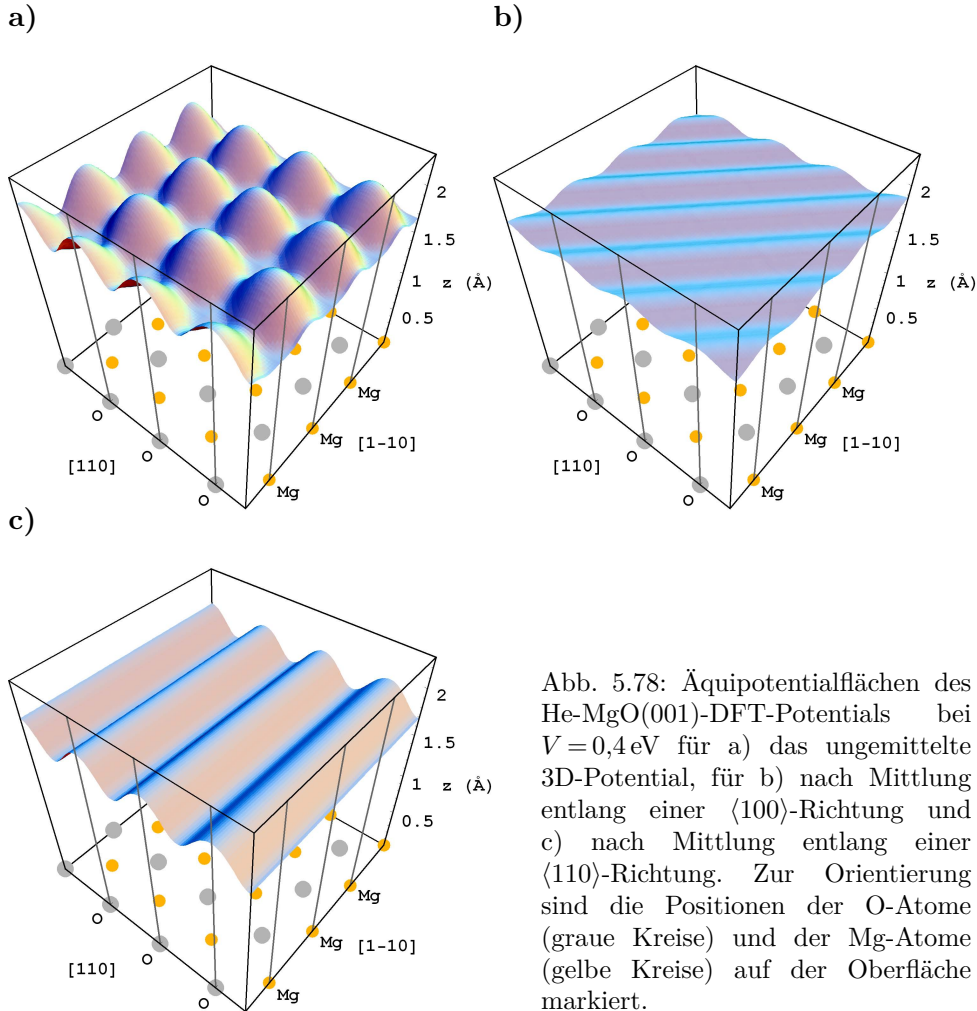


Abb. 5.78: Äquipotentialflächen des He-MgO(001)-DFT-Potentials bei $V = 0,4 \text{ eV}$ für a) das ungemittelte 3D-Potential, für b) nach Mittlung entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung und c) nach Mittlung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Zur Orientierung sind die Positionen der O-Atome (graue Kreise) und der Mg-Atome (gelbe Kreise) auf der Oberfläche markiert.

allel zur Oberfläche bewegt. Daher wurde von Sierka und Wlodarczyk [379] das He-Mg(001)-Potential mittels DFT ohne und mit Berücksichtigung von Van-der-Waals-Kräften nach Ref. [385] berechnet und mit dem Experiment verglichen. Dazu wurde ein MgO(001)-Kristall bestehend aus 10 Atomebenen modelliert. Die Atome der untersten vier Ebenen wurden auf den Idealpositionen des Festkörper-Gitters fixiert, während den anderen Atomen erlaubt war, das energetische Minimum aufzusuchen. Dabei ergab sich ein Rumpling von $\delta z = 0,057 \text{ Å}$. Bei Vernachlässigung der Van-der-Waals-Kräfte ergab sich $\delta z = 0,054 \text{ Å}$. Dann wurden alle Atome fixiert, ein He-Atom vor der Oberfläche positioniert und die Gesamtenergie des Systems bestimmt. Dabei wurde si-

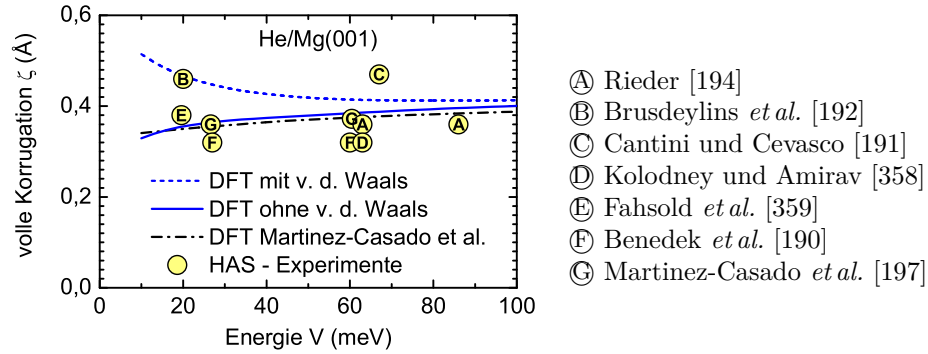


Abb. 5.79: Volle Korrugation ζ der Äquipotentialflächen des ungemittelten He-MgO(001)-Potentials. Blaue gestrichelte/durchgezogene Kurve: DFT-Potential (Abb. 5.78a) mit/ohne Berücksichtigung der Van-der-Waals-Kräfte. Schwarze Punkt-Strich-Kurve: DFT-Rechnung von Martinez-Casado *et al.* Gelbe Punkte: experimentelle Werten aus der Beugung thermischer He-Atome (HAS) [190–192, 194, 197, 358, 359].

chergestellt, dass es keine Wechselwirkung zwischen den He-Atomen aus den periodischen Randbedingungen gibt. Die Gesamtenergie wurde für 24 äquidistante Abstände von $z = 0,55 \text{ Å}$ bis $z = 4 \text{ Å}$ an 15 hochsymmetrischen aber symmetrisch nicht äquivalenten Positionen (x, y) der Oberfläche bestimmt, die jeweils zu fünf verschiedenen Geraden parallel zur $\langle 110 \rangle$ - bzw. zur $\langle 100 \rangle$ -Richtung gehören. Aus der Änderung der Gesamtenergie ergibt sich das Potential an den 15 Positionen (x, y) , wobei zwischen den 24 Stützstellen z abschnittsweise polynomisch interpoliert wird, sodass die Funktion $V_{x,y}(z)$ die berechneten Werte exakt trifft. Zusammen mit den symmetrieäquivalenten Positionen ist das Potential damit an 64 Positionen der primitiven Einheitszelle bekannt. Die 3D-Äquipotentialflächen $V(x, y, z) = \text{konst}$ werden bei dieser Punktdichte ausreichend genau beschrieben, die Zwischenwerte können interpoliert werden. Zur Veranschaulichung wird in Abb. 5.78a die 3D-Äquipotentialfläche von He-MgO(001) für $V(x, y, z) = 0,4 \text{ eV}$ gezeigt. Zum Vergleich mit der Beugung schneller Atome muss dieses Potential nun entlang der jeweiligen Gitterführungsrichtung y gemittelt werden. In Abb. 5.78b und 5.78c sind die Äquipotentialflächen für $V(x, z) = 0,4 \text{ eV}$ des entlang einer $\langle 100 \rangle$ - bzw. $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentials gezeigt.

Die Korrugation der 3D-Äquipotentialflächen $\zeta(V)$, d.h. der senkrechte Abstand des Maximums der jeweiligen Äquipotentialfläche über dem O-Atom zum Minimum über dem Mg-Atom (siehe Abb. 5.78a), wurde bereits im Bereich $V < 100 \text{ meV}$ mittels thermischer He-Streuung bestimmt. Ein direkter Vergleich mit der Korrugation Δz des entlang der jeweiligen Gitterführungsrichtung gemittelten Potentials aus der

Beugung schneller Atome ist aber nicht möglich, jedoch sollte ein adäquates Potential, welches nach der Mittelung die Beugung schneller Atome korrekt beschreibt, auch diese Daten wiedergeben. In Abb. 5.79 wird die Funktion $\zeta(V)$ aus dem He-MgO(001)-DFT-Potential mit (blau gestrichelte Kurve) und ohne (blaue volle Kurve) Berücksichtigung der Van-der-Waals-Kräfte mit den Ergebnissen aus der Beugung thermischer He-Atome [190–192, 194, 197, 358, 359] und dem Ergebnis der DFT-Rechnung von Martinez-Casado *et al.* [197] (schwarze Punkt-Strich-Kurve) verglichen. Das Potential ohne Berücksichtigung der Van-der-Waals-Kräfte zeigt eine gute Übereinstimmung mit der Korrugation $\zeta(V)$ des DFT-Potentials von Martinez-Casado *et al.* Dieses vernachlässigt gleichfalls die Van-der-Waals-Kräfte. Dabei wird angenommen, dass dies den repulsiven Bereich des Potentials nicht beeinflusst [197]. Im Vergleich zum DFT-Potential unter Berücksichtigung von Van-der-Waals-Kräften zeigen sich jedoch Abweichungen, die umso größer werden, je kleiner die Energie wird. Erst für Energien ab $V > 90$ meV werden die Van-der-Waals-Kräfte vernachlässigbar, also in dem Bereich, der für schnelle He-Atome relevant ist. Die Kurven zeigen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Datenpunkten aus der Streuung thermischer He-Atome [190–192, 194, 197, 358, 359], wobei die Abweichungen für die Kurve bei Vernachlässigung der Van-der-Waals-Kräfte etwas geringer sind. Andererseits basieren die experimentellen Werte auf Analysen in Harte-Wand-Näherung, welche die tatsächliche Korrugation immer etwas unterschätzen [70, 75, 178].

Die Analysen der Intensität der Reflexe bei Beugung schneller Atome aus Abschn. 5.2.4 basieren auf der Annahme, dass ein sinusförmig korrigiertes Potential eine sehr gute Näherung des tatsächlichen Potentials darstellt. In Abb. 5.80a werden die berechneten Punkte der Äquipotentialflächen $V(x, z) = \text{konst}$ des entlang $\langle 110 \rangle$ gemittelten He-MgO(001)-DFT-Potentials (vergl. Abb. 5.78c) mit Kosinus-Kurven verglichen. Im für die Beugung schneller He-Atome relevanten Bereich von $0,1 \text{ eV} < V < 0,8 \text{ eV}$ weichen die Punkte kaum von der Kosinus-Funktion ab. Erst ab $V > 1 \text{ eV}$ nehmen die Abweichungen immer weiter zu. Für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung, bei der Beugung im Bereich $0,2 \text{ eV} < V < 1,7 \text{ eV}$ beobachtet wurde, ist ein sinusförmiges Potential ebenfalls eine sehr gute Näherung, wie Abb. 5.80b zu entnehmen ist. Auch bei der Beschreibung der Beugung thermischer Atome wurde festgestellt, dass ein einziger Fourier-Koeffizient ausreicht, um die experimentellen Daten ausreichend genau zu beschreiben [192, 194, 380].

Während die Äquipotentialflächen in Abb. 5.80a fast parallel zueinander verlaufen, steigt die Korrugation in 5.80b mit der Energie

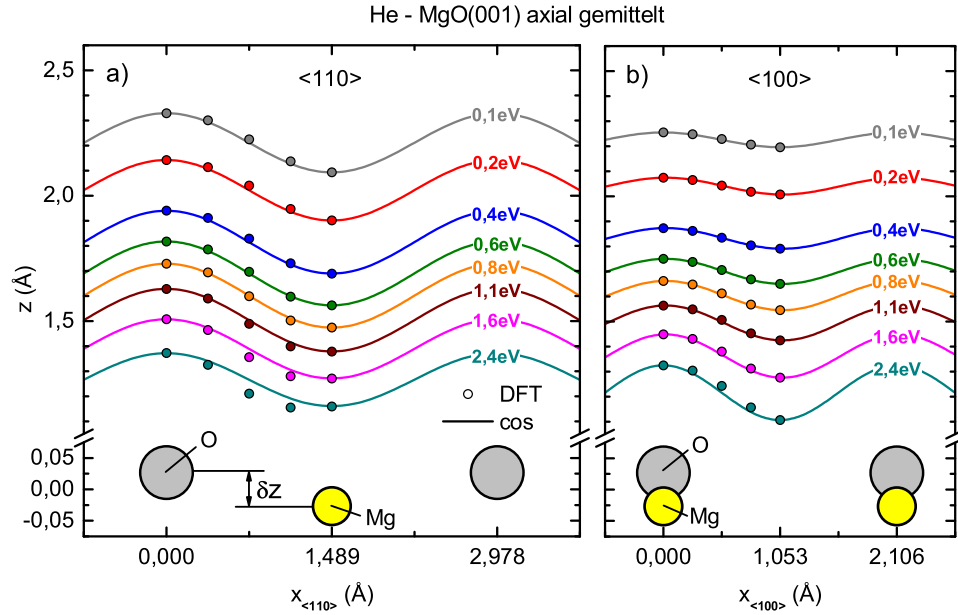


Abb. 5.80: Äquipotentialflächen $V(x, z) = \text{konst}$ eines He-Atoms vor MgO(001) bei axialer Mittlung a) entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung und b) entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Kreise: Ergebnisse der DFT-Rechnung unter Berücksichtigung von Van-der-Waals-Kräften und eines Rumpplings von $\delta z = 0,057 \text{ \AA}$. Kurven: Kosinus-Funktionen mit jeweils gleicher Korrugation Δz wie die des DFT-Potentials.

V und sinkendem Abstand z zur Oberfläche. Dies liegt daran, dass in $\langle 110 \rangle$ -Richtung das schwache Potential der Mg-Atomkette zwischen den O-Atomketten bei geringeren Abständen einen größeren Beitrag zum Gesamtpotential liefert und auf diese Weise die mit fallendem Abstand steigende Korrugation kompensiert, die ein Gitter aus O-Atomen ohne Mg-Atome hätte. Abb. 5.80a entspricht Abb. 2.26a und Abb. 5.80b entspricht Abb. 2.26b aus den Überlegungen zur Korrektur der Abweichungen aufgrund der Harte-Wand-Näherung in Abschn. 2.3.7. Zur Bestimmung des Korrekturfaktors f für die in Abb. 5.73 und Abb. 5.75 gezeigten Ergebnisse für Δz aus der Analyse der Beugungsmuster in Harte-Wand-Näherung wurde die Modulation der relativen Intensität der Beugungsordnung $n = 0$ aus der semiklassischen Trajektorien-Simulation mit dem Ergebnis in Harte-Wand-Näherung, jeweils auf Basis des selben He-MgO(001)-DFT-Potentials, verglichen. In Abb. 5.81 wird das Ergebnis der Simulation in Harte-Wand-Näherung, d.h. ohne Berücksichtigung der Variation der Wellenzahl k entlang der Trajektorie Gl. (2.93) als graue Dreiecke gezeigt. Die Intensität aus der analytischen Lösung für die harte Wand nach Gl. (2.75) stimmt mit diesem Ergebnis überein (graue gepunktete Kurve), wenn für $\Delta z(E_{\perp})$ die Korrugation des in der Simulation verwendeten Potentials eingesetzt wird.

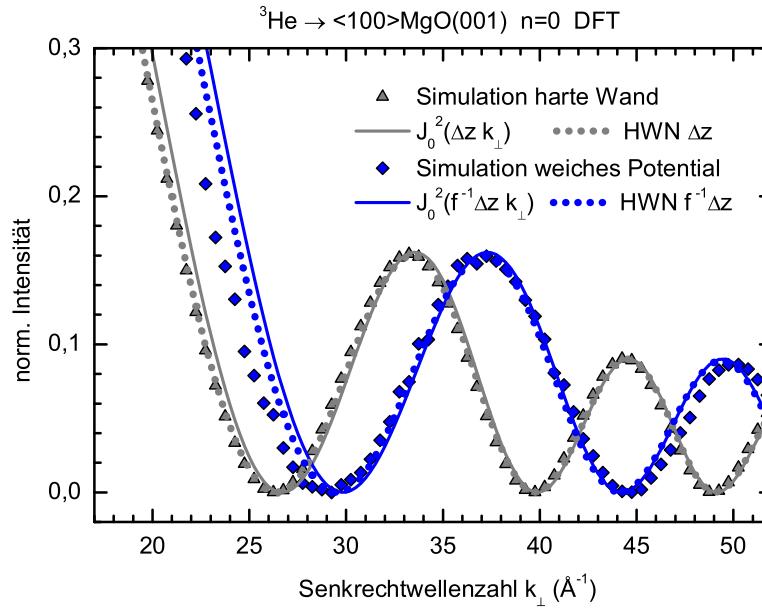


Abb. 5.81: Relative Intensität von $n=0$ für die Beugung von ^3He -Atomen an MgO(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Blaue Rauten: Ergebnis der semiklassischen Simulation auf der Basis des He-MgO(001)-DFT-Potentials (Abb. 5.80b). Graue Dreiecke: Gleiche Simulation, allerdings in Harte-Wand-Näherung, d.h. ohne Berücksichtigung der Variation von k . Gepunktete Kurven: analytische Lösung für die harte Wand nach Gl. (2.75) ohne Korrekturfaktor (grau) und mit Berücksichtigung des Korrekturfaktors hinsichtlich der Weichheit des Potentials $f = 1,25$ (blau). Durchgezogene Kurven: analytische Lösung mit J_0^2 nach Gl. (2.78) ohne (grau) und mit Korrekturfaktor (blau). Für die analytischen Lösungen wurde die Korrigation $\Delta z(E_\perp)$ des in der Simulation verwendeten Potentials eingesetzt.

Das Ergebnis für die Lösung auf Basis der Bessel-Funktionen Gl. (2.78) mit der selben Funktion $\Delta z(E_\perp)$ unterscheidet sich kaum. Im Vergleich der Ergebnisse für die harte Wand mit denen aus der Simulation für das „weiche“ Potential (blaue Rauten), d.h. unter Berücksichtigung der Variation der Wellenzahl k , ist eine deutliche Verschiebung hin zu größeren Wellenzahlen zu erkennen. Eine Anpassung von Gl. (2.78) an diese Daten liefert daher eine zu geringe Korrigation Δz_{HWN} . Aus dem Verhältnis zur tatsächlichen Korrigation lässt sich der Korrekturfaktor $f = \Delta z / \Delta z_{\text{HWN}}$ gewinnen. Für $f = 1,25$ ergibt sich mit Gl. (2.78) die blaue durchgezogene Kurve bzw. mit Gl. (2.75) die blaue gepunktete Kurve in Abb. 5.73b. Unter der Annahme, dass das verwendete Potential die Realität richtig beschreibt, können die aus den Beugungsmustern in Harte-Wand-Näherung ermittelten Werte für die Korrigation (Kreuze in Abb. 5.73) mit f multipliziert werden, um so die Daten hinsichtlich der Harte-Wand-Näherung zu korrigieren. Die korrigierten

Werte werden in Abb. 5.73 als graue Kreise gezeigt. Ein analoger Vergleich für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung zeigt nur sehr geringe Abweichungen von der Harte-Wand-Näherung, sodass hier (Abb. 5.75) $f = 1$.

In Abb. 5.73 wird die Korrugation Δz des entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung gemittelten DFT-Potentials (rote durchgezogene Kurve) mit den korrigierten experimentellen Werten verglichen. Die Werte stimmen überein. Für das Potential ohne Van-der-Waals-Kräfte (gestrichelte rote Kurve) gibt es geringe Abweichungen bei $V < 0,4 \text{ eV}$. Für das entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelte Potential ist die Übereinstimmung ebenfalls hoch (durchgezogene rote Kurve in Abb. 5.75). Erst bei $V < 0,15 \text{ eV}$ zeigen sich Abweichungen bei Vernachlässigung der Van-der-Waals-Kräfte. Welches Potential geeigneter ist, um die Daten zu beschreiben, ist jedoch nicht zu entscheiden.

Zusammenfassung: Eine Extrapolation von Potentialen aus der Beugung thermischer He-Atome hin zu den für Beugung schneller Atome relevanten Energien ist nicht möglich. Die Beschreibung des He-MgO(001)-Potentials durch Superposition von individuell berechneten He-Mg²⁺- und He-O²⁻-HF-Paarpotentialen ist eine gute Näherung im Vergleich zu Potentialen auf der Basis von Paarpotentialen für neutrale Atome. Das He-MgO(001)-DFT-Potential zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Die Van-der-Waals-Kräfte sind im relevanten Energiebereich vernachlässigbar. Ein sinusförmiges Potential ist für das entlang der $\langle 100 \rangle$ - bzw. $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelte He-MgO(001)-Potential im relevanten Energiebereich eine sehr gute Näherung. Für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung gibt es kaum Abweichungen aufgrund der Harte-Wand-Näherung, für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung ergibt sich ein Korrekturfaktor $f = 1,25$.

5.2.6 Beugungskarten

Um den kompletten gemessenen Datensatz mit der Theorie zu vergleichen, wurden Beugungskarten (siehe Abschn. 2.3.5) erstellt. Diese setzen sich aus zahlreichen einzelnen projizierten Intensitätsverteilungen wie in Abb. 5.74 zusammen, genauso wie in Abb. 5.36 am Beispiel $\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{LiF}(001)$ dargestellt. Da die Intensitäten und die Ablenkwinkel θ_n der Bragg-Reflexe bei gegebener Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} sind, ist die $(\theta, \lambda_{\text{dB}\perp})$ -Beugungskarte eine Art Fingerabdruck des Wechselwirkungspotentials.

In Abb. 5.82a wird die Beugungskarte der gemessenen Intensitäten bei der Streuung von ³He-Atomen an MgO(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung gezeigt. Die grau-gestrichelten Kurven markieren die theore-

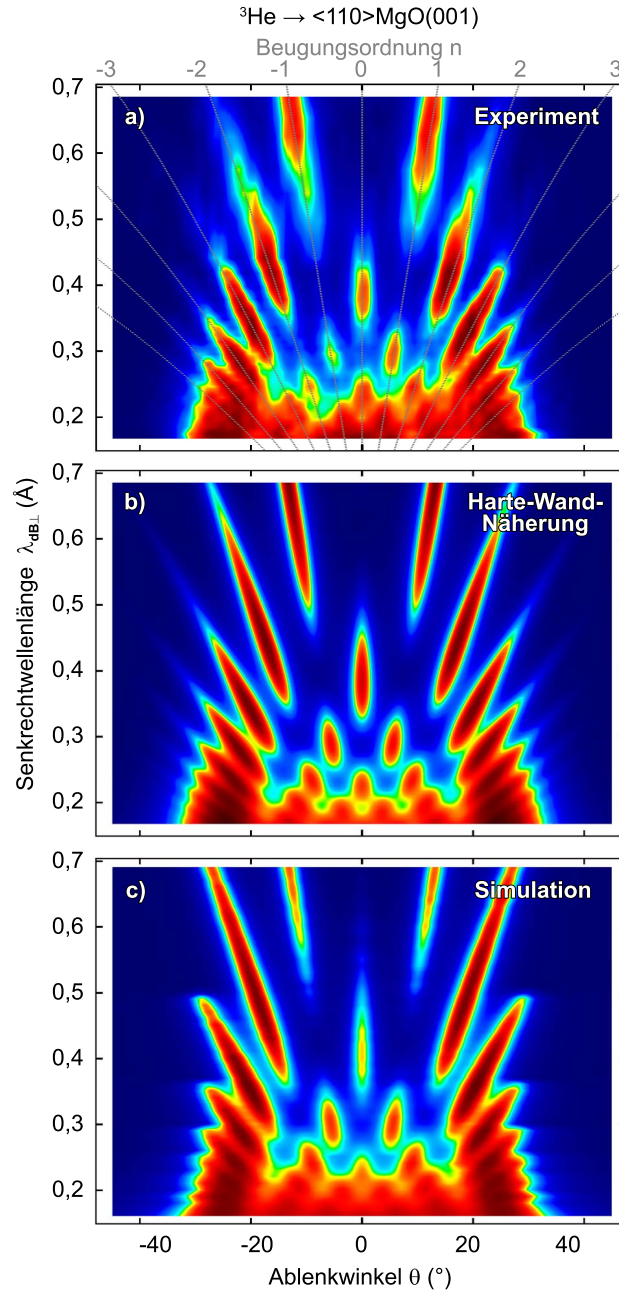


Abb. 5.82: Beugungskarten für die Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung aus a) Experiment, b) Rechnung in Harte-Wand-Näherung mit der Korrugation Δz des $\text{He-MgO}(001)$ -DFT-Potentials (Abb. 5.75) und c) der semiklassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des $\text{He-MgO}(001)$ -DFT-Potentials (Abb. 5.80a). Normierung und Farbkodierung der drei Beugungskarten sind gleich. Rot = hohe, blau = geringe Intensität. Die grau gepunkteten Kurven in a) markieren die theoretische Position des Bragg-Reflexes der Ordnung n nach Gl. (2.62).

tische Position der Bragg-Reflexe θ_n nach Gl. (2.62) und zeigen, welche Maxima zur gleichen Ordnung n gehören. Im Vergleich zur Beugung von He an LiF(001) entlang $\langle 110 \rangle$ (Abb. 5.37) sind wesentlich weniger Maxima erkennbar. Dies liegt an der gegenüber He-LiF(001) geringeren Korrugation Δz (vergl. Abb. 5.75 und Abb. 5.26) und dem stärkeren Einfluss von Dekohärenz-Prozessen (siehe Abb. 5.69). Dem ist in Abb. 5.82b die theoretische Beugungskarte aus der Näherung durch eine sinusförmige harte Wand basierend auf dem Quadrat der Bessel-Funktionen J_n^2 nach Gl. (5.8) gegenübergestellt. Dabei wurde für $\Delta z(\lambda_{dB\perp})$ die Korrugation des He-MgO(001)-DFT-Potentials aus Abb. 5.75 eingesetzt. Für die azimutale Verbreiterung der Bragg-Reflexe $w_L(\lambda_{dB\perp})$ wurde die experimentell bestimmte lineare Anpassung an die gemessenen Breiten der Beugungsordnung $n=0$ bei Streuung entlang einer Random-Richtung unter ähnlichem Einfallswinkel (schwarze Gerade in Abb. 5.69) verwendet. Das Ergebnis aus der semiklassischen Trajektorien-Simulation basierend auf dem weichen He-Mg(001)-DFT-Potential (Abb. 5.80a) wird in Abb. 5.82c gezeigt. Auch hier wurde die azimutale Breite der Bragg-Reflexe an das Experiment angepasst. Die drei Beugungskarten haben die gleiche Normierung und Farbkodierung.

Die theoretische Beugungskarte aus Abb. 5.82b weist einen hohen Grad an Übereinstimmung mit dem Experiment auf. Die Position der Maxima und Minima stimmen auch gut mit der semiklassischen Simulation in Abb. 5.82c überein. Dies zeigt, dass die Harte-Wand-Näherung für diesen Fall eine gute Näherung ist. Ein Korrekturfaktor wie bei der Streuung von He an LiF(001) entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung kann die Übereinstimmung nicht mehr verbessern. Die erkennbaren Unterschiede in der Intensität zwischen Abb. 5.82b und 5.82c beruhen auf dem Versagen der primitiv semiklassischen Theorie am klassischen Regenbogen θ_{rb} und dem daraus resultierenden Problem, die simulierte Verteilung dennoch korrekt zu normieren. Im Gegensatz zum Experiment geht die Intensität in der semiklassischen Simulation für $\theta \rightarrow \theta_{rb}$ gegen ∞ und verschwindet für $|\theta| > \theta_{rb}$. Die klassische Intensität σ , die nach Gl. (2.35) die semiklassische Intensität mitbestimmt, wurde – wie in Abschn. 2.3.6 beschrieben – mit einer empirischen Gauß-Funktion gefaltet, um die Einflüsse der thermischen Schwingungen zu berücksichtigen. Doch auch nach dieser Glättung ist die Intensität bei θ_{rb} noch deutlich höher als in der Berechnung mit dem Quadrat der Bessel-Funktion, welche die Intensität um θ_{rb} korrekt beschreibt. Daher ist in der semiklassischen Trajektorien-Simulation die relative Intensität der Beugungsordnung n , für die $\theta_n(\lambda_{dB\perp}) \approx \theta_{rb}$ gilt, zu hoch (vergl. Abb. 2.16). Deshalb scheint die Intensität für $n=0$ in Abb. 5.82c im Vergleich zu Abb. 5.82b etwas zu niedrig.

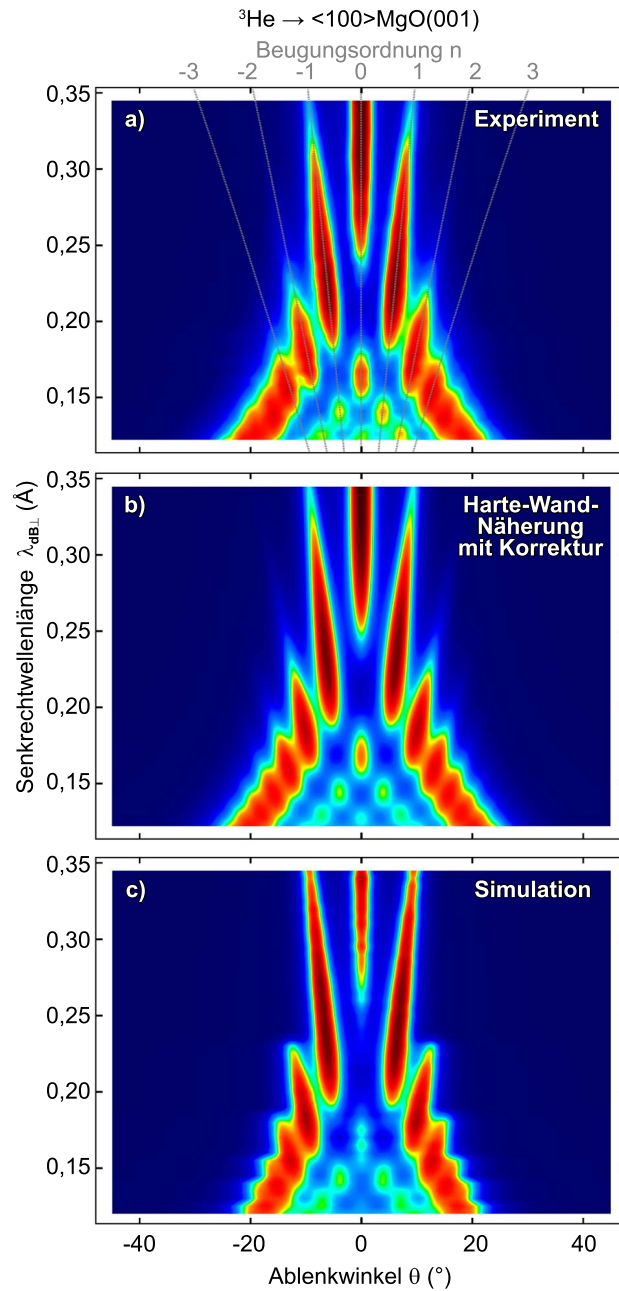


Abb. 5.83: Beugungskarten für die Streuung von ^3He -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang $\langle 100 \rangle$ aus a) Experiment, b) Rechnung in Harte-Wand-Näherung mit Korrugation $\Delta z/f$ des $\text{He-MgO}(001)$ -DFT-Potentials (Abb. 5.73) unter Berücksichtigung des Korrekturfaktors $f = 1,25$ bezüglich der Weichheit des Potentials und c) der semiklassischen Trajektorien-simulation auf Basis des $\text{He-MgO}(001)$ -DFT-Potentials (Abb. 5.80b). Normierung und Farbkodierung der drei Beugungskarten sind gleich. Rot = hohe, blau = geringe Intensität. Die grau gepunkteten Kurven in a) markieren die theoretische Position des Bragg-Reflexes der Ordnung n nach Gl. (2.62).

Für Streuung von ^3He entlang der $\langle 100 \rangle$ -Richtung ergibt sich eine ähnlich gute Übereinstimmung mit den theoretischen Beugungskarten auf Basis des He-MgO(001)-DFT-Potentials. Die theoretische Beugungskarte in Abb. 5.83b aus der Näherung durch eine sinusförmige harte Wand nach Gl. (5.8) zeigt kaum Abweichungen von der experimentellen Beugungskarte in Abb. 5.83a, wenn die Korrugation des He-MgO(001)-DFT-Potentials (rote Kurve in Abb. 5.73) über den in Abschn. 5.2.5 bestimmten Korrekturfaktor verringert wird, um so die Abweichung aufgrund der Weichheit des Potentials zu berücksichtigen. Die Position der Maxima stimmt mit der in Abb. 5.83c gezeigten Beugungskarte aus der semiklassischen Trajektorien-Simulation überein, welche auf dem „weichen“ He-Mg(001)-DFT-Potential (Abb. 5.80b) basiert. Jedoch ist auch hier aufgrund der Grenzen der Gültigkeit der primitiv semiklassischen Näherung die Intensität der Reflexe in der Umgebung des klassischen Regenbogens gegenüber den anderen Ordnungen zu hoch, es fehlt Intensität auf der klassisch dunklen Seite des Regenbogens und für große $\lambda_{\text{dB}\perp}$ wird die Intensität der Ordnung $n=0$ unterschätzt, da die primitiv semiklassische Näherung ab $\lambda_{\text{dB}\perp} > 0,25 \text{ \AA} > 3\Delta z$ (siehe Gl. (2.95)) deutliche Abweichungen zeigt.

Zusammenfassung: Der gesamte Datensatz aus der Beugung schneller He-Atome an MgO(001) lässt sich mit dem He-MgO(001)-DFT-Potential gut beschreiben.

5.2.7 Das Rumpling von MgO(001)

Wie LiF(001) zeigt auch MgO(001) eine hauptsächlich auf der unterschiedlichen Polarisierbarkeit der Anionen und der Kationen beruhende unterschiedliche Relaxation des Mg^{2+} und des O^{2-} -Untergitters in der obersten Atomebene [341] genannt Rumpling δz . Dabei bedeutet $\delta z > 0$ eine Verschiebung der O^{2-} -Ionen in Bezug auf die Mg^{2+} -Ionen weg vom Festkörper (siehe Abb. 5.80). Das Rumpling von MgO(001) wurde in den vergangenen drei Jahrzehnten sehr oft theoretisch [197, 336, 339–342, 367, 369, 391–406] und experimentell [334, 365, 366, 368, 375, 376, 387–390] studiert. In Abb. 5.84 werden die Ergebnisse dieser Arbeiten miteinander verglichen. Die Werte liegen fast alle in einem Bereich $0 < \delta z < 0,1 \text{ \AA}$. Der auffallend hohe Wert aus der Schalenmodell-Rechnung von Lewis *et al.* [400] mit $\delta z = 0,23 \text{ \AA}$ beruht auf einer Verwechslung von Rumpling und Korrugation. Diese Autoren betonen nämlich die gute Übereinstimmung ihres berechneten Rumpling-Wertes δz mit der von Rieder [194] mittels HAS bestimmten Wert für die Korrugation ζ des He-MgO(001)-Potentials. Ein δz wurde

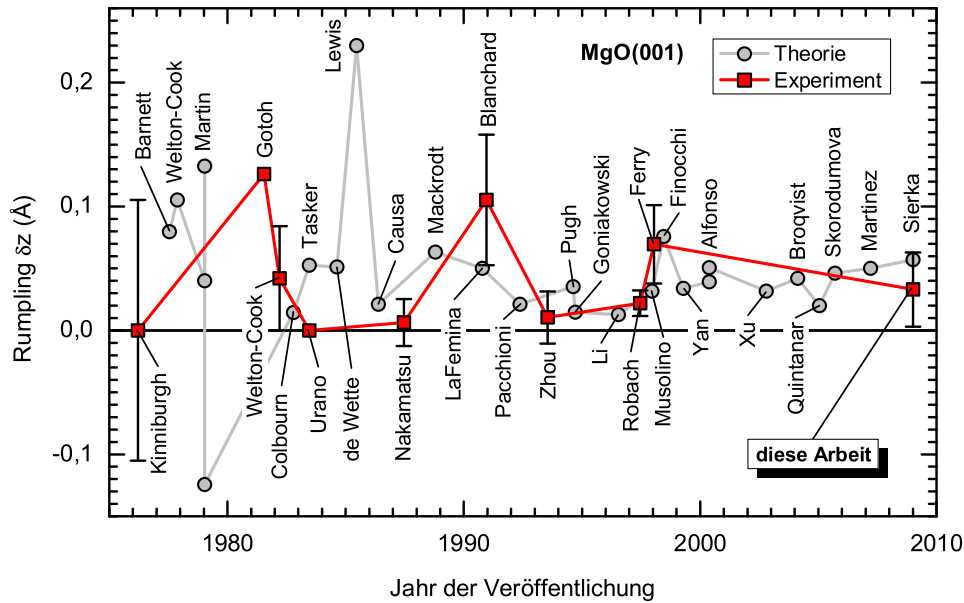


Abb. 5.84: Literaturwerte für das Rumpling δz von MgO(001). Experimentell bestimmte Werte (rote Quadrate) mittels LEED von Kinniburgh [365, 368], Welton-Cook [366], Urano [376], Blanchard [387] und Ferry [388], mittels RHEED von Gotoh [389], aus Ionenstreuung von Nakamatsu [390] und Zhou [334] sowie durch streifende Streuung von Röntgenstrahlen (GIXS) von Robach [375] und theoretische Werte (graue Kreise) aus DFT-Rechnungen von Pugh [391], Li [392], Musolino [393], Finocchi [394], Yan [395], Alfonso [340], Xu [396], Broqvist [341], Quintanar [397], Skorodumova [342], Martinez [197] und der hier verwendeten DFT-Rechnung von Sierka und Wlodarczyk [379], aus Hartree-Fock-Rechnungen von Causa [369], aus Schalenmodellrechnungen von Welton-Cook [398], Martin [367], Colbourn [399], Lewis [400], Barnett [401, 402] und de Wette [336] sowie aus anderen Modellen von Tasker [403], Mackrodt [404], LaFemina [405], Pacchioni [406] und Goniakowski [339].

in Ref. [194] aber nicht abgeschätzt. Mit einem auf Ionenradien basierenden Modell hätte ganz im Gegenteil nur ein $\delta z < 0$ die geringe Korugation erklären können [194]. In solchen Schalenmodell-Rechnungen wird das Gleichgewicht zwischen langreichweitiger Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ionen (Kern und eine daran gebundene polarisierbare Elektronenschale) und einer kurzreichweitigen abstoßenden Wechselwirkung, welche durch empirische Born-Mayer-Potentiale beschrieben werden, ermittelt. Martin *et al.* [367] haben gezeigt, wie sehr die Ergebnisse von der Wahl des Potentials und den Annahmen über die Polarisierbarkeit der Ionen abhängen. Diese Autoren kommen je nach Modell auf Werte von $\delta z = -0,12 \text{ \AA}$ bis $+0,13 \text{ \AA}$. Auch Welton-Cook *et al.* [398] vergleichen verschiedene Potentiale sowie Parameter und errechnen Werte zwischen $\delta z = -0,03 \text{ \AA}$ und $+0,18 \text{ \AA}$. Daher streuen

die Ergebnisse aus den Schalenmodell-Rechnungen [336, 367, 398–402]. Alle theoretischen Arbeiten ab 1994 sind DFT-Rechnungen [197, 340–342, 391–397]. Diese Ergebnisse streuen mit $0,01 \text{ \AA} < \delta z < 0,08 \text{ \AA}$ weit weniger. Das Ergebnis der DFT-Rechnung von Sierka und Wlodarczyk [379] von $\delta z = 0,057 \text{ \AA}$ fällt auch in diesen Bereich.

Wie bei LiF(001) wurde zunächst getestet, wie sensitiv das Potential auf eine Änderung des Rumplings reagiert. Dazu wurde von Sierka und Wlodarczyk das He-MgO(001)-Potential in gleicher Weise wie zuvor, jedoch mit doppelt so großem Rumpling, ohne Rumpling und mit negativen Rumpling, berechnet. Die Korrugation des entlang $\langle 100 \rangle$ gemittelten Potentials ist wegen der gemischten Atomketten praktisch unabhängig von δz . Die Korrugationen Δz nach Mittlung entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung sind in Abb. 5.75 als Funktion der Senkrechtenenergie E_{\perp} dargestellt (graue Kurven). Der Abstand der Kurven beträgt weniger als die Hälfte der Änderung von δz . Eine zuvor durchgeführte Abschätzung der Funktion $\Delta z(\delta z)$ mit dem He-MgO(001)-Potential auf Basis der Superposition der HF-Paarpotentiale ließ einen deutlich größeren Effekt erwarten. So aber stimmt die graue gestrichelte Kurve in Abb. 5.75 für die Korrugation des Potentials ohne Rumpling $\delta z = 0$ ähnlich gut mit den aus den Beugungsmustern ermittelten Werten (Kreise und blaue Gerade) überein, wie die rote Kurve, welche die Korrugation des DFT-Potentials der energetisch optimalen Anordnung mit $\delta z = 0,057 \text{ \AA}$ repräsentiert.

Um den Wert δz mit der besten Übereinstimmung zu ermitteln, wurde – wie bei LiF(001) – die Intensitätsmodulation der Bragg-Reflexe über die Variation von δz angepasst. In Abb. 5.85 wird die gemessene Intensität der Ordnungen $0 \leq n \leq 3$ als Funktion der Senkrechwellenzahl $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\perp}$ mit den theoretischen Werten verglichen, die sich aus Gl. (2.76) unter Verwendung der in Abb. 5.75 gezeigten Korrugationen $\Delta z(E_{\perp})$ der vier DFT-Potentiale mit unterschiedlichem δz ergeben. Die rote Kurve entspricht wieder dem Potential mit dem in der DFT-Rechnung als optimal bestimmten Wert $\delta z = 0,057 \text{ \AA}$. Für kleinere δz verschieben sich die Maxima zu größeren k_{\perp} und umgekehrt.

Um zu entscheiden welches δz die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen zeigt, wurde für jeden Datenpunkt die quadratische Abweichung von der jeweiligen theoretischen Kurve berechnet und diese zu $\sigma^2 = \sum_{i=1}^N \sum_n \left\{ \left(\tilde{I}_n \right)_i - (I_n)_i \right\}^2 / nN$ summiert, wobei \tilde{I}_n die gemessene Intensität der Ordnung n , N die Anzahl der ausgewerteten Beugungsmuster und I_n die theoretische Intensität nach Gl. (2.76) ist. Zwar wurde das Potential nur für vier verschiedene δz exakt ausgerechnet, jedoch kann man jeden Zwischenwert sehr genau aus einer linearen Interpolation gewinnen. In Abb. 5.86a ist jeweils

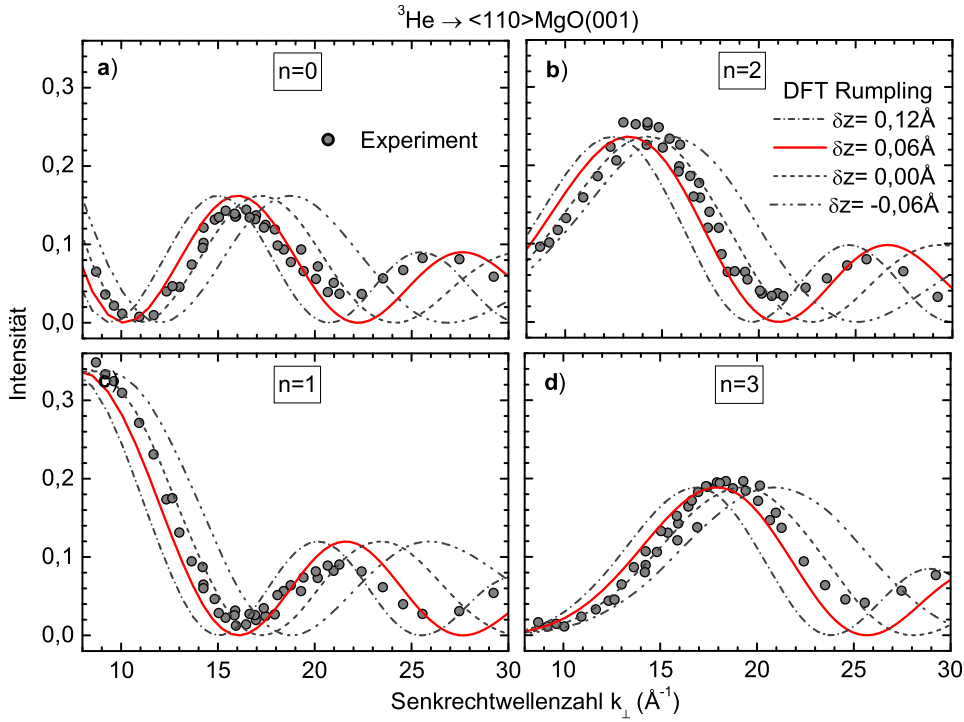


Abb. 5.85: Intensität der Bragg-Reflexe der Ordnungen $0 \leq n \leq 3$ für die Streuung von ^3He -Atomen an MgO(001) entlang $\langle 110 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrechtwellenzahl $k_{\perp} = 2\pi/\lambda_{\perp}$ (Kreise) im Vergleich zu den theoretischen Intensitäten in Harte-Wand-Näherung für die Korrugation des axial gemittelten DFT-Potentials von Sierka und Wlodarczyk [379] für verschieden Rumpling-Werte δz .

die Korrugation Δz der zur höchsten und zur niedrigsten gemessenen Senkrechterenergie E_{\perp} korrespondierenden Äquipotentialfläche mit $V(x, z) = 0,05 \text{ eV}$ bzw. $V(x, z) = 0,59 \text{ eV}$ des entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten DFT-Potentials als Funktion des Rumpling δz dargestellt. Die Geraden repräsentieren jeweils die beste Anpassung einer linearen Funktion an die berechneten Werte. Eine Abweichung von diesen Geraden ist nicht erkennbar. Daher kann die Korrugation Δz bei jedem Zwischenwert δz linear interpoliert werden. Gleiches gilt für alle Äquipotentialflächen zwischen den beiden gezeigten Extremfällen von $V(x, z) = E_{\perp}$. Weitere DFT-Rechnungen waren daher nicht nötig, um das δz mit der besten Übereinstimmung zu finden. In Abb. 5.86b sind die ermittelten Abweichungen σ^2 für die vier DFT-Potentiale mit unterschiedlichem δz als blaue Kreise dargestellt, die graue Kurve basiert auf der linearen Interpolation $\Delta z(E_{\perp}) \sim \delta z$ zwischen den vier Potentialen. Diese Kurve besitzt ein Minimum bei $\delta z = 0,033 \text{ \AA}$. Die Unsicherheit wird mit $< 0,02 \text{ \AA}$ abgeschätzt, da die Kurven für $\delta z = 0$ und $\delta z = 0,06 \text{ \AA}$ in Abb. 5.75 alle Messpunkte einschließen. Hinzu kommt

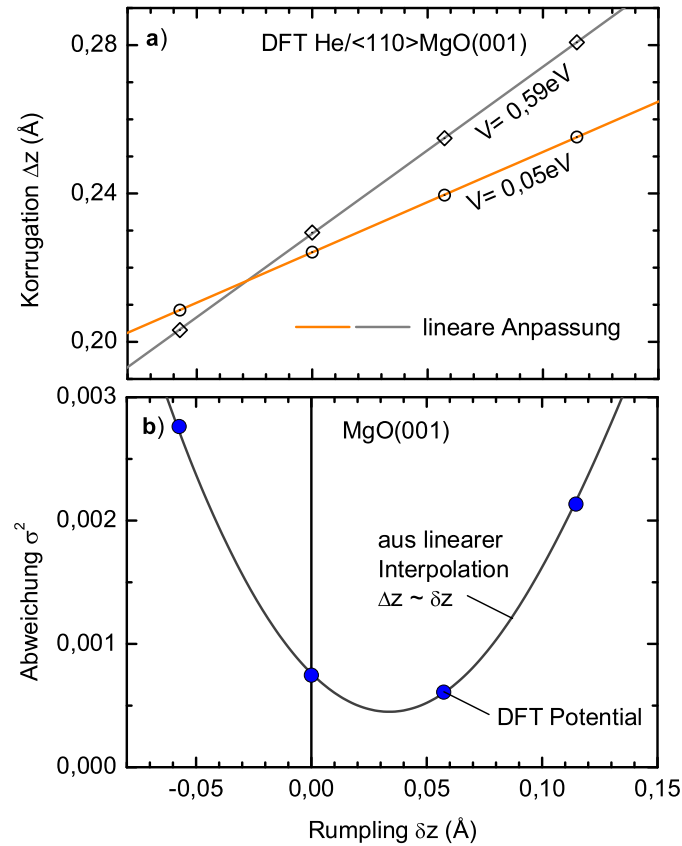


Abb. 5.86: **a)** Korrugation Δz der zur höchsten und zur niedrigsten gemessenen Senkrechterenergie E_{\perp} korrespondierenden Äquipotentialflächen mit $V(x, z) = 0,05 \text{ eV}$ bzw. $V(x, z) = 0,59 \text{ eV}$ der entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelten DFT-Potentiale mit unterschiedlichem Rumpling δz . Die Geraden repräsentieren die beste lineare Anpassung. **b)** Summe der quadratischen Abweichungen σ^2 der gemessenen Intensität der Bragg-Reflexe der Ordnung $0 \leq n \leq 3$ aus Abb. 5.85 von der theoretischen Intensität nach Gl. (2.76) unter Verwendung der Korrugation des DFT-Potentials als Funktion des Rumplings δz . Die blauen Kreise entsprechen den exakt gerechneten Potentialen, die Kurve auf der linearen Interpolation zwischen diesen.

noch die Unsicherheit aufgrund der Näherung durch die harte Wand, welche über den Vergleich zwischen den Simulationen mit fixierter und mit variierender Wellenzahl k zu kleiner als $0,01 \text{ Å}$ abgeschätzt wurde. Die Verringerung der effektiven Korrugation aufgrund der thermischen Schwingungen der Atome der Oberfläche sollte aufgrund der geringeren Auslenkungen kleiner sein als bei LiF(001), wo eine Verschiebung von $-0,005 \text{ Å}$ abgeschätzt wurde (Abschn. 5.1.7). Damit ergibt sich ein Rumpling von $\delta z = (0,03 \pm 0,03) \text{ Å}$.

Würde das Potential stärker vom Rumpling δz abhängen, dann hät-

ten die in Abb. 5.86a gezeigten Geraden einen stärkeren Anstieg, und die in Abb. 5.86b gezeigte Kurve hätte ein schärfer definiertes Minimum. Daher ist die Bestimmung des Rumplings von MgO(001) mittels Beugung schneller Atome nicht genauer als andere Messmethoden. In Abb. 5.84 wird der ermittelte Rumppling-Wert mit den Ergebnissen aus anderen Experimenten (rote Quadrate) und den oben schon besprochen Rechnungen verglichen. Der derzeit genaueste experimentelle Wert aus der streifenden Streuung von Röntgenstrahlen (GIXS) von Robach *et al.* [34, 375] liegt innerhalb der Unsicherheit und ist mit $\delta z = (0,022 \pm 0,005) \text{ \AA}$ etwas kleiner und um ca. eine Größenordnung genauer als der hier ermittelte Wert. Die Ergebnisse aus LEED-Untersuchungen von Welton-Cook *et al.* [366], Ferry *et al.* [388] und Blanchard *et al.* [387] sind hingegen mit $\delta z = (0,04 \pm 0,04) \text{ \AA}$ bzw. $(0,07 \pm 0,03) \text{ \AA}$ und $(0,1 \pm 0,05) \text{ \AA}$ alle größer und nicht genauer als das Ergebnis aus der Beugung schneller Atome. Der letzte Wert ist genauso wie das von Gotoh *et al.* [389] aus RHEED-Kikuchi-Linien bestimmte Rumppling von $\delta z = 0,13 \text{ \AA}$ nicht mit den Daten aus der Beugung schneller Atome vereinbar. Die mittels Ionenstreuung ermittelten Rumppling-Werte von Zhou *et al.* [334] und von Nakamatsu *et al.* [390] liegen mit $\delta z = (0,01 \pm 0,02) \text{ \AA}$ bzw. $(0,006 \pm 0,02) \text{ \AA}$ wiederum unterhalb des hier ermittelten Wertes. Dabei kann man sich aber fragen, ob diese Autoren angesichts von Simulationen, die auf dem Molière-Potential basieren bzw. von Schattenkegel-Rechnungen, bei denen die Abschirmlänge empirisch angepasst wird, die Unsicherheiten nicht zu optimistisch eingeschätzt haben.

Zusammenfassung: Der aus der Beugung schneller Atome ermittelte Rumppling-Wert von $\delta z = (0,03 \pm 0,03) \text{ \AA}$ stimmt mit dem größten Teil der DFT-Ergebnisse [197, 340–342, 391, 393, 395–397] und den aktuelleren Experimenten [334, 375, 388] gut überein. Die erzielte Genauigkeit ist aber nicht besser als die der anderen Methoden, da sich eine Variation des Rumplings nur abgeschwächt auf die Korrugation des Potential auswirkt, welches ja die eigentliche Messgröße ist.

5.2.8 Überzählige Regenbögen

Auch bei der Streuung an MgO(001) lassen sich wie schon bei LiF(001) die überzähligen Regenbögen noch dann beobachten, wenn diskrete Bragg-Reflexe nicht mehr aufgelöst werden. In Abb. 5.87 ist die Intensität bei Streuung von 1 keV ^4He an $\langle 110 \rangle \text{MgO}(001)$ unter $\Phi_{\text{in}} = 2,00^\circ$ als Funktion des Ablenkwinkels θ aufgetragen. Ähnlich wie bei der Streuung an LiF(001) (Abb. 5.12, S. 132), sind die Bragg-Reflexe unter solch

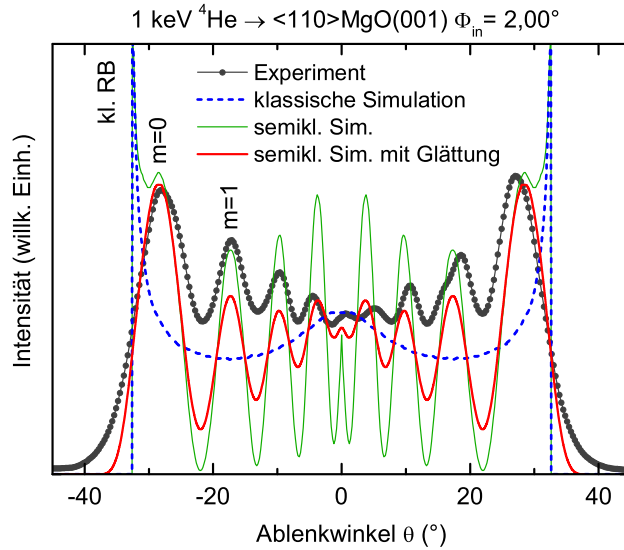


Abb. 5.87: Überzählige Regenbögen bei der Streuung von ^4He mit $E_0 = 1,00$ keV an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 2,00^\circ$. Schwarze Punkte: Experiment. Kurven: Simulation mit dem He-Mg^{2+} - und dem He-O^{2-} -HF-Potential aus Abb. 5.77 in klassischer Näherung (blau gestrichelt) und semiklassischer Näherung mit (rot) und ohne (grün) Berücksichtigung von Winkelverbreiterung.

großem Einfallswinkel so stark verbreitert, dass sie nicht mehr trennbar sind. Es bleiben nur die Beugungsmuster aufgrund der Interferenz zwischen den zwei verschiedenen Trajektorien mit gleichem Ablenkwinkel vom Typ A und B (Abb. 2.21, S. 62) erhalten. In der Simulation braucht die Interferenz zwischen den symmetrisch äquivalenten Trajektorien vom Typ A und A^* also nicht berücksichtigt zu werden. Die grauen Kurven in Abb. 5.87 repräsentieren das Ergebnis der Simulation in semiklassischer Näherung mit dem He-Mg^{2+} - und dem He-O^{2-} -HF-Potential von Gärtner aus Abb. 5.77 unter Berücksichtigung des Rumpling. Diese Verteilung zeigt genauso wie die ebenfalls dargestellte Verteilung aus der klassischen Simulation eine Singularität am klassischen Regenbogen (kl. RB). Man kann noch in Betracht ziehen, dass verschiedene Prozesse wie thermische Schwingungen der Atome der Oberfläche zu einer Winkelaufstreuung führen. Die Auswirkungen solch einer Winkelaufstreuung lässt sich veranschaulichen, indem – wie in Abschn. 2.3.6 beschrieben – die simulierte Verteilung mit einer Gauß-Verteilung gefaltet wird (rote Kurve). Solch eine Glättung verändert nicht die Position der überzähligen Regenbögen, lässt aber die Singularität verschwinden, wobei das absolute Maximum nun der Interferenzregenbogen $m = 0$ ist.

Obwohl die Position der überzähligen Regenbögen sehr gut mit den

experimentellen Ergebnissen übereinstimmt, wird die relative Intensität der Maxima schlechter wiedergegeben als bei Streuung von He an $\langle 110 \rangle$ LiF(001) (vergl. Abb. 5.46 auf S. 187). Dies liegt an der Näherung des Potentials durch eine Superposition von HF-Potentialen, mit der zwar die klassischen Regenbögen von He entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung von MgO(001) gut zu beschreiben sind, die aber für $\langle 100 \rangle$ Abweichungen zeigt. Dies wird im folgenden Abschnitt auch im Vergleich zu den Ergebnissen aus der Simulation mit dem DFT-Potential diskutiert.

Zusammenfassung: Wie bei LiF(001) können auch bei der Streuung an MgO(001) überzählige Regenbögen noch dann beobachtet werden, wenn die Kohärenz für Bragg-Reflexe nicht mehr ausreicht. Eine semi-klassische Simulation basierend auf einem axial gemittelten Potential, in der nur die Interferenz zwischen unterschiedlichen Trajektorien mit gleichem Ablenkwinkel θ berücksichtigt wird, reicht aus, um die überzähligen Regenbögen gut zu beschreiben.

5.2.9 Regenbögen und Potentiale

Bisher wurden nur die Beugungsmuster bei Streuung von He-Atomen mit $E_{\perp} < 2$ eV studiert, das Potential also nur im entsprechenden Energiebereich betrachtet. In diesem Abschnitt werden die Winkelpositionen der klassischen Regenbögen bzw. des Quanten-Regenbogens mit den theoretischen Vorhersagen verglichen, um Rückschlüsse auf das Potential bei höheren Senkrechtere Energien zu ziehen.

5.2.9.1 He-MgO(001)

In Abb. 5.88a werden die gemessenen Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von ^3He -Atomen an MgO(001) entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung mit den theoretischen Regenbogenwinkeln verglichen. Die klassische Simulation auf Basis des Potentials aus der Superposition von He-Mg $^{2+}$ und dem He-O $^{2-}$ -HF-Potential (Abb. 5.77) überschätzt die experimentellen Ergebnisse deutlich (schwarze gestrichelte Kurve). Der klassische Regenbogenwinkel aus der Simulation mit dem He-MgO(001)-DFT-Potential (rote Strich-Punkt-Kurve) beschreibt die experimentellen Daten hingegen gut. Berücksichtigt man, dass das Maximum des Quanten-Regenbogens gegenüber dem klassischen Regenbogen bei θ_{rb} verschoben ist (siehe z.B. Abb. 2.14), indem man die Winkelposition von $m = 0$ mittels der semiklassischen Trajektoriensimulation bestimmt (rote durchgezogene Kurve), dann verbessert sich die Übereinstimmung. Bei Berechnung der Winkelposition des Quanten-Regenbogens $m = 0$ in Näherung für eine sinusförmige harte Wand nach Gl. (2.89) aus der

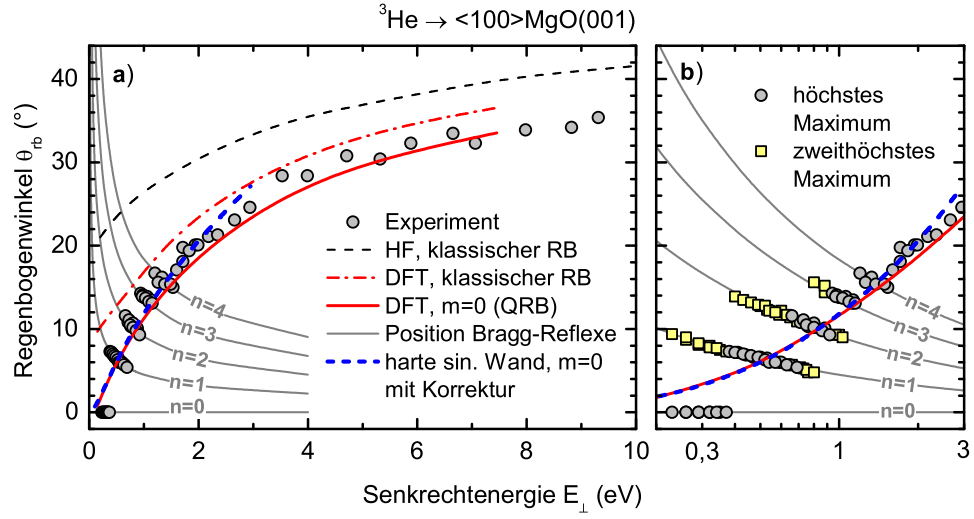


Abb. 5.88: **a)** Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Graue Kreise: Winkelposition des höchsten Maximums. Schwarz gestrichelte Kurve: Ergebnis der klassischen Simulation mit He-Mg^{2+} - und He-O^{2-} -HF-Potentialen. Rote Kurven: Ergebnisse der semiklassischen Simulation mit dem DFT-Potential für den klassischen Regenbogen (Strich-Punkt-Kurve) und Quanten-Regenbogen $m=0$ (volle Kurve). Blau gestrichelte Kurve: theoretische Position für $m=0$ in Näherung für eine sinusförmige harte Wand mit gleicher Korrugation wie die des DFT-Potentials unter Berücksichtigung der Korrektur für die Weichheit des Potentials. Graue Kurven: theoretische Position der Bragg-Reflexe für $0 \leq n \leq 4$. **b)** halblogarithmische Darstellung von a) für $E_{\perp} < 3 \text{ eV}$ zusätzlich mit der Position des zweithöchsten Bragg-Reflexes (gelbe Quadrate).

Korrugation des $\text{He-Mg}(001)$ -DFT-Potentials (rote Kurve Abb. 5.73) unter Berücksichtigung der in Abschn. 5.2.5 ermittelten Korrektur hinsichtlich der Weichheit des Potentials $f = 1,25$ ergeben sich im Bereich $E_{\perp} < 1,5 \text{ eV}$ genau die gleichen Winkel (blau gestrichelte Kurve). Erst für $E_{\perp} > 2 \text{ eV}$, wo die korrespondierenden Äquipotentialflächen stärker von den Kosinus-Funktionen abweichen (siehe Abb. 5.80b), wird diese Näherung zunehmend schlechter. Für $E_{\perp} < 1,5 \text{ eV}$ ist nur dort ein Intensitätsmaximum zu finden, wo es nach der Bragg-Bedingung auch erlaubt ist. Zur Veranschaulichung sind die theoretischen Positionen nach Gl. (2.62) als graue Kurven eingezeichnet. Zur besseren Erkennbarkeit wird der Bereich $E_{\perp} < 3 \text{ eV}$ in Abb. 5.88b in einer halblogarithmischen Darstellung gezeigt. Zusätzlich werden die Positionen des zweithöchsten Bragg-Reflexes als gelbe Quadrate gezeigt. Es ist immer der Bragg-Reflex am intensivsten, der sich am wenigsten von der Position des Quanten-Regenbogens $m=0$ unterscheidet. Die Variation des Rumplings δz hat wegen der gemischten $\langle 100 \rangle$ -Atomketten keinen

$$\text{He} \rightarrow \langle 110 \rangle \text{MgO}(001) \quad \Phi_{\text{in}} = 2,39^\circ$$

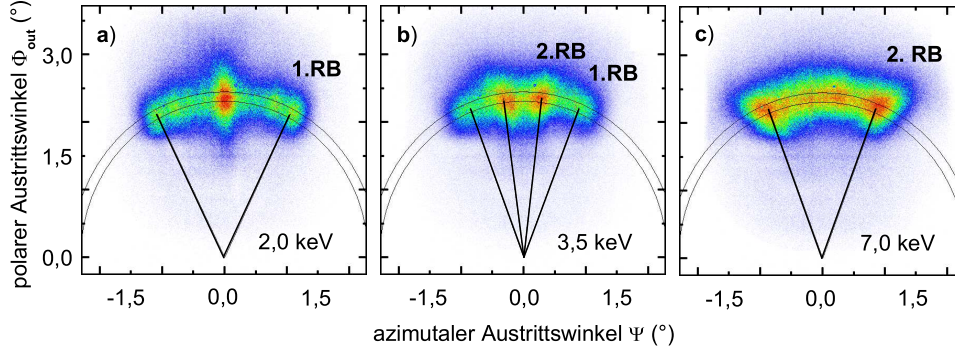


Abb. 5.89: Klassische Regenbögen bei der Streuung von He-Atomen an MgO(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 2,39^\circ$ mit a) $E_0 = 2,0$ keV, b) $3,5$ keV und c) $7,0$ keV. Die Ablenkungswinkel des äußeren (1. RB) und des inneren (2. RB) Regenbogens sind jeweils mit Linien markiert.

Einfluss auf die Ergebnisse.

Im Gegensatz zur Streuung entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung tritt bei der $\langle 110 \rangle$ -Richtung bei ausreichend hoher Senkrechterenergie ein zweiter, innerer Regenbogen auf, der von der Ablenkung der Projektile an den Mg-Ketten herrührt. Während bei geringen Energien die Äquipotentialflächen ein Minimum über der Mg-Kette und ein Maximum über der O-Kette aufweisen (Abb. 5.80), ähneln die Äquipotentialflächen bei höheren Energien einem „W“ mit einem Minimum zwischen Mg- und O-Kette sowie einem lokalen Maximum über der Mg-Kette neben dem Maximum über der O-Kette. Die Ablenkfunktion hat dann zwei weitere Extremstellen. Als Beispiel wird in Abb. 5.79 die Streuung von He-Atomen unter $\Phi_{\text{in}} = 2,39^\circ$ gezeigt. Während bei $E_0 = 2$ keV in Abb. 5.89a neben einem zentralen Maximum bei $\theta = 0$, das aus der Streuung in einem weitgehend flachen Bereich der korrespondierenden Äquipotentialfläche über der Mg-Kette herrührt, nur der äußere Regenbogen (1. RB) auftritt, ist bei $E_0 = 3,5$ keV in Abb. 5.89b der Winkel des inneren Regenbogens (2. RB) deutlich größer Null und der äußere Regenbogen nur noch schwach zu erkennen. Bei $E_0 = 7$ keV in Abb. 5.89c sind die beiden Regenbögen nicht mehr zu trennen.

In Abb. 5.90a sind die Ablenkungswinkel θ der Intensitätsmaxima für die Streuung von ^3He -Atomen an MgO(001) entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter drei verschiedenen Φ_{in} als Funktion von E_\perp dargestellt. Die grauen Kreise repräsentieren den äußeren Regenbogen, während die blauen Rauten die Positionen des inneren, zweiten Regenbogens (2. RB) angeben. Die grünen Dreiecke stellen die Winkelpositionen des ersten überzähligen Regenbogens $m = 1$ dar. Die schwarz gestrichelten Kur-

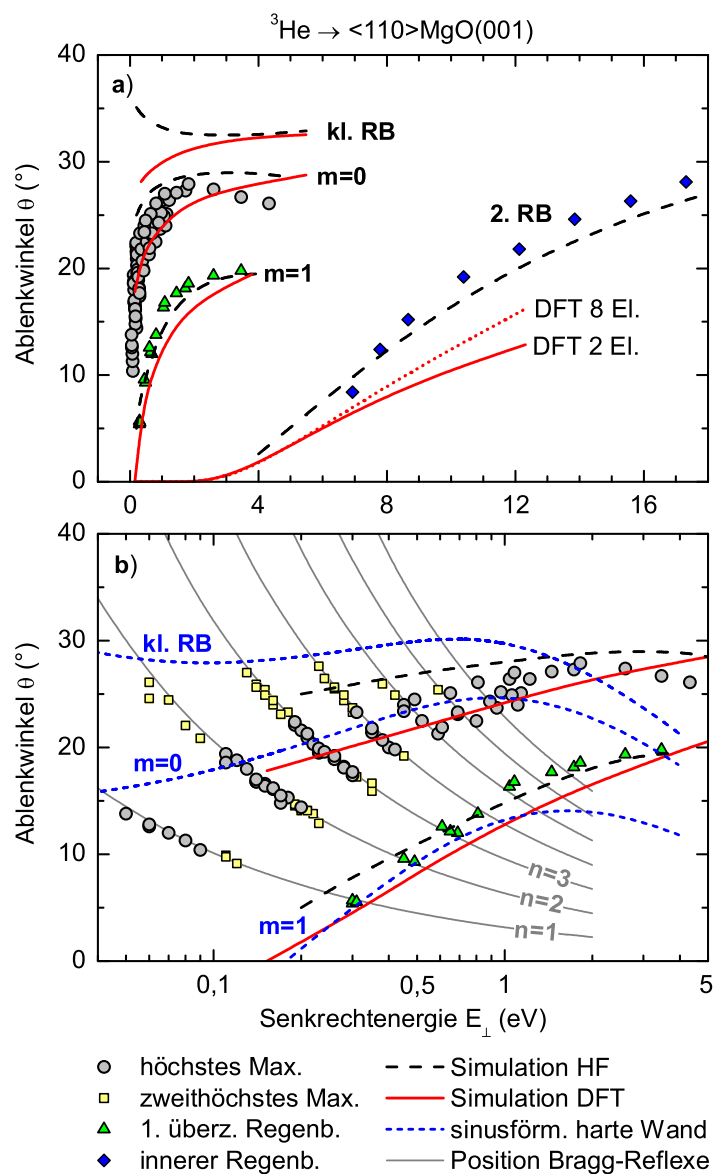


Abb. 5.90: **a)** Ablenkungswinkel θ als Funktion von E_{\perp} für die Streuung von ^3He -Atomen an $\text{MgO}(001)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung. **b)** halblogarithmische Darstellung von **a)** für $E_{\perp} < 5$ eV. Kreise: Höchstes Maximum, grüne Dreiecke: Erster überzähliger Regenbogen, blaue Rauten in **a)**: innerer Regenbogen (2. RB), gelbe Quadrate in **b)**: zweithöchster Bragg-Reflex. Rote Kurven: Ergebnisse der semiklassischen Simulation mit dem DFT-Potential für klassischen Regenbogen (kl. RB), Quanten-Regenbogen $m=0$, erster überzähligen Regenbogen $m=1$ und inneren Regenbogen (2. RB). Schwarze gestrichelte Kurven: Ergebnisse der Simulation mit He-Mg^{2+} - und He-O^{2-} -HF-Potentialen. Blaue kurz gestrichelte Kurven: theoretische Position der Maxima für eine sinusförmige harte Wand mit gleicher Korruption wie beim DFT-Potential. Graue Kurven in **b)**: theoretische Position der Bragg-Reflexe für $1 \leq n \leq 7$.

ven repräsentieren die Ergebnisse der semiklassischen Simulation unter Verwendung des Potentials aus der Superposition von He-Mg²⁺- und He-O²⁻-HF-Potentials (Abb. 5.77) unter Berücksichtigung des Rumpfling. Die oberste Kurve (kl. RB) repräsentiert den klassischen Regenbogenwinkel θ_{rb} definiert als der maximale Ablenkwinkel, während die unteren mit $m=0$ und $m=1$ bezeichneten Kurve die Winkelposition des Quanten-Regenbogens bzw. die Position des 1. überzähligen Regenbogens wiedergeben (siehe Abb. 5.87 auf S. 248). Die roten Kurve sind das Ergebnis der semiklassischen Simulation mit dem DFT-Potential (Abb. 5.80a). Sowohl der äußere als auch der innere Regenbogen sowie der 1. überzählige Regenbogen werden von beiden Simulationen gut beschrieben. Auffällig ist, dass sich der klassische Regenbogen (kl. RB) und der Quanten-Regenbogen $m=0$ selbst bei $E_{\perp} = 5$ eV noch deutlich unterscheiden, wobei nur letzterer mit den experimentellen Daten übereinstimmt. Dies könnte auch bei Projektil-Oberfläche-Systemen der Fall sein, die keine Bragg-Reflexe zeigen. Insbesondere für leichte Atome wie He bei geringem E_{\perp} sollte man daher auch für scheinbar klassische Streuung den Unterschied zwischen klassischem und Quanten-Regenbogen berücksichtigen.

Das HF-Potential gibt die experimentellen Daten bei hohen Energien (kleinen Abständen) besser wieder als das DFT-Potential. Gewöhnlich werden bei der Berechnung eines DFT-Potentials nur die Valenzelektronen exakt berücksichtigt, die Elektronen der inneren Schalen werden mit sogenannten effektiven Rumpfpotentials (ECP) approximiert, um den Rechenaufwand zu verringern. Kommt das He-Atom mit höheren Energien in Bereiche, die durch das ECP dominiert werden, wird das DFT-Potential unrealistisch. Die rot gepunktete Kurve in Abb. 5.90a (DFT 8 El.) zeigt das Ergebnis der Simulation mit einem DFT-Potential, bei dem nicht nur die beiden Valenzelektronen, sondern 8 der 12 Elektronen des Mg-Atoms exakt berechnet wurden. Erst ab $E_{\perp} > 6$ eV unterscheidet sich diese Kurve von der des Standard-DFT-Potentials (DFT 2 El.), sie passt etwas besser zu den experimentellen Daten. Für $E_{\perp} < 6$ eV gleichen sich beide Kurven, die Gültigkeit des DFT-Potentials endet also bei $E_{\perp} > 6$ eV. Die Superposition von HF-Potentials ist hingegen eine umso bessere Näherung, je höher die Energie ist, da hier Effekte von der Oberfläche wie z.B. die Polarisierung des He-Atoms im Feld der Ionen vernachlässigbar werden.

Bei kleinen E_{\perp} besteht der Regenbogen aus diskreten Bragg-Maxima. Abb. 5.90b zeigt eine halblogarithmische Darstellung von Abb. 5.90a für $E_{\perp} < 5$. Die Bragg-Winkel nach Gl. (2.62) mit $d = g_{MgO}/\sqrt{2} = 2,978 \text{ \AA}$ für $1 \leq n \leq 7$ sind als graue Kurven dargestellt. Zusätzlich zur Winkelpositionen des intensivsten Maximums (graue Kreise) sind die

Positionen des zweit höchsten Bragg-Reflexes als gelbe Quadrate eingezeichnet. Beide folgen recht genau den theoretischen Kurven für θ_n , wobei jeweils der Bragg-Reflex intensiver ist, welcher näher am Quanten-Regenbogen $m=0$ liegt. Die blau gestrichelten Kurven in Abb. 5.90b repräsentieren das Ergebnis der Rechnung für eine sinusförmige harte Wand mit gleicher Korrugation Δz wie die des DFT-Potentials (rote Kurve Abb. 5.75) für $m=0$ und $m=1$ durch Lösung von Gl. (2.83) für $n \in \mathbb{R}$ und für den klassischen Regenbogen (kl. RB) nach Gl. (2.51). Auch in dieser Näherung wird die Position des intensivsten Bragg-Reflexes vom klassischen Regenbogen überschätzt, während sie durch die Kurve für $m=0$ gut beschrieben wird. Für $E_{\perp} < 0,9 \text{ eV}$ unterscheidet sich die Lösung der Rechnung für $m=0$ und $m=1$ kaum vom Ergebnis der Simulation mit dem DFT-Potential (rote Kurven). In diesem Energiebereich können die Äquipotentialflächen des axial gemittelten Potentials sehr gut durch eine Kosinus-Funktion approximiert werden (Abb. 5.80a). Für höhere Energien wird diese Näherung zunehmend schlechter, weshalb die Kurven ab $E_{\perp} > 0,9 \text{ eV}$ divergieren.

Zusammenfassung: Mit dem He-MgO(001)-Potential aus der DFT-Rechnung lassen sich die klassischen Regenbögen bis zu Senkrechterenergien von $E_{\perp} < 6 \text{ eV}$ gut wiedergeben. Ab $E_{\perp} > 6 \text{ eV}$ tritt bei Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung ein weiterer Regenbogen auf, welcher mit dem Potential auf der Basis der Superposition von HF-Potentialen beschrieben werden kann. Die Näherung des Potentials durch eine sinusförmige harte Wand ist zur Beschreibung der Streuung entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung bis $E_{\perp} < 1,5 \text{ eV}$ ausreichend genau, wenn die Korrektur der Abweichung durch die Harte-Wand-Näherung berücksichtigt wird. Für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung ist die Näherung bis $E_{\perp} < 0,9 \text{ eV}$ gültig.

5.2.9.2 Ne-MgO(001)

In Abb. 5.91 sind exemplarisch Intensitätsverteilungen für die Streuung von Ne-Atomen an MgO(001) gezeigt. Wie bei der Streuung von He-Atomen tritt auch bei der Streuung von Ne-Atomen entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung ein weiterer, innerer Regenbogen (2. RB) auf (vergl. Abb. 5.89), wenn E_{\perp} einen bestimmten Wert überschreitet. In Abb. 5.92 werden die gemessenen Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von Ne-Atomen an MgO(001) entlang einer a) $\langle 100 \rangle$ - und b) $\langle 110 \rangle$ -Richtung mit den theoretischen Regenbogenwinkeln aus der klassischen Simulation verglichen. Die experimentellen Ergebnisse sind bei gegebener Senkrechterenergie E_{\perp} unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} und daher auch hier unabhängig von der Projektilenergie E_0 . Im Gegensatz zur Streu-

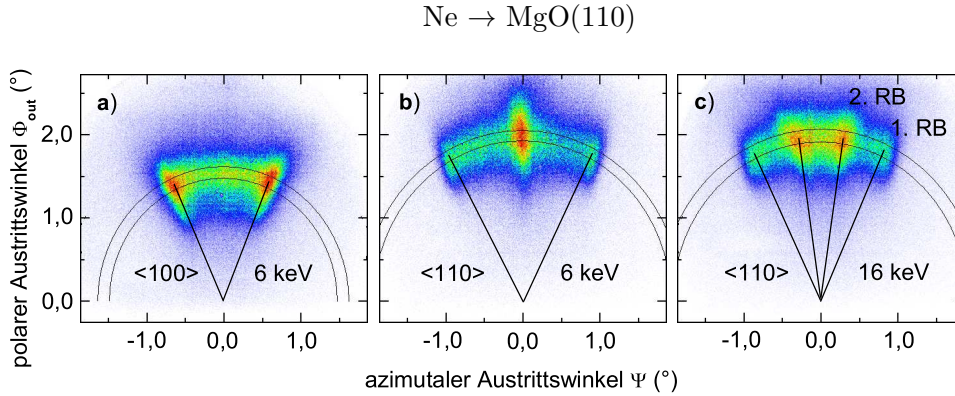


Abb. 5.91: Intensitätsverteilungen bei der Streuung von Ne-Atomen an MgO(001) mit $E_0 = 6$ keV entlang a) einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 1,56^\circ$ und b) einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 2,00^\circ$. c) so wie b) jedoch mit $E_0 = 16$ keV. Die Ablenkwinkel des äußeren (1. RB) und des inneren (2. RB) Regenbogens sind jeweils mit Linien markiert.

ung von S-Atomen an LiF(001) ist der äußere Regenbogen (1. RB) nur bei kleineren E_\perp wohldefiniert und auswertbar (vergl. Abb. 5.92b mit Abb. 5.65b).

Die neutralen Ne-Mg⁰- und Ne-O⁰- bzw. ionischen Ne-Mg²⁺- und Ne-O²⁻-HF-Potential von Gärtner [54, 55], auf denen die Simulationen beruhen, sind in Abb. 5.93 gegenübergestellt. Die durchgezogenen schwarzen Kurven repräsentieren die jeweilige Anpassung einer analytischen Funktion V_{HF} nach Gl. (2.14) an die berechneten Datenpunkte mit den Parametern aus Tab. 5.6. Die Potentiale für die zweifach geladenen Target-Atome basieren auf Wellenfunktionen für im MgO-Kristall eingebettete Ionen aus Ref. [381]. Sowohl das ZBL- als auch das OCB-Potential sind keine angemessene Näherung für die Wechselwirkung zwischen Ne-Atom und den Mg²⁺- bzw. O²⁻-Ionen. Die Regenbogenwinkel lassen sich daher mit den generalisierten Potentialen nur unzureichend beschreiben (nicht gezeigt). Die Simulation auf Basis der Superposition der Ne-Mg²⁺- und Ne-O²⁻-HF-Potentiale können hingegen die Regenbogenwinkel für beide Richtungen qualitativ beschreiben, überschätzen die experimentellen Ergebnisse aber um ca. 5° (durchgezogene Kurven in Abb. 5.92).

David Blauth [373] ermittelte mit einer dreidimensionalen Trajektorien-simulation ohne Berücksichtigung der thermischen Auslenkungen der Atome der Oberfläche vergleichbare Ergebnisse. Unter Berücksichtigung der thermischen Auslenkung bei einer Target-Temperatur von $T = 300$ K zeigten sich geringe Verschiebungen der Regenbogen-Maxima von etwa 2° zu kleineren Winkeln θ_{rb} . Dass die thermischen

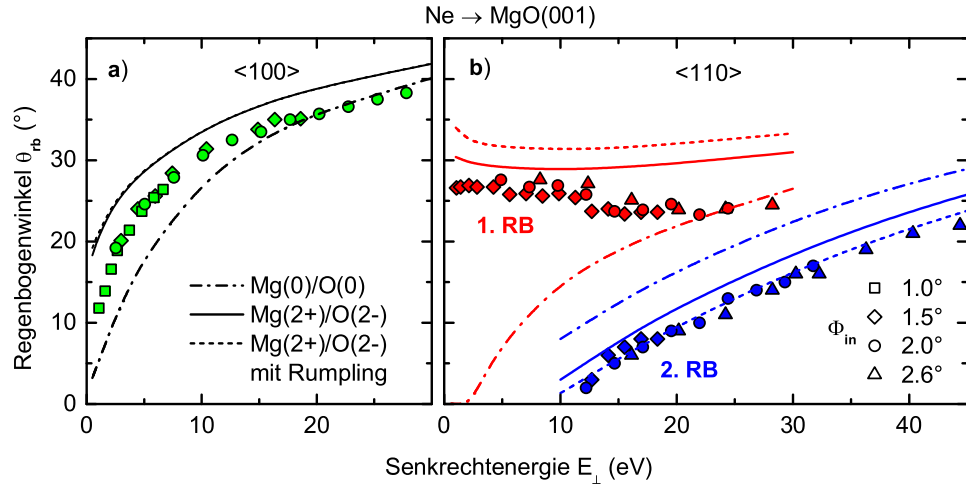


Abb. 5.92: Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von Ne-Atomen an MgO(001) entlang einer a) $\langle 100 \rangle$ - und b) $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Rote bzw. grüne Symbole: äußerer Regenbogen (1. RB), blaue Symbole: innerer Regenbogen (2. RB). Kurven: Ergebnisse aus der klassischen Trajektorien-simulation mit den neutralen Ne-Mg⁰- und Ne-O⁰-HF-Potentialen (Strich-Punkt) sowie den ionischen Ne-Mg²⁺- und Ne-O²⁻-HF-Potentialen (Abb. 5.93) mit (gestrichelt) und ohne Berücksichtigung des Rumplings (durchgezogen). Man beachte die Unabhängigkeit vom Einfallswinkel Φ_{in} .

Schwingungen einen geringen Einfluss auf die Regenbogenwinkel haben, wurde bereits von Danailov *et al.* bei der Simulation der Streuung von He- und Xe-Atomen an Cu(111) erkannt [97]. In Ref. [107] findet sich ein Vergleich der Simulationen mit und ohne Berücksichtigung der thermischen Auslenkungen für Streuung von He-Atomen an Al(100). Auch dabei zeigten sich nur geringe Verschiebungen zu kleineren θ_{rb} bei $T = 300$ K im Vergleich zu $T = 0$ K. Die Vernachlässigung der thermischen Schwingungen durch die zweidimensionale Simulation ist also eine gute Näherung.

Die Ergebnisse aus der Simulation mit den Ne-Mg⁰- und Ne-O⁰-HF-Potentialen (Strich-Punkt-Kurven in Abb. 5.92) zeigen bei Streuung entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ für den äußeren Regenbogen (1. RB) ein unterschiedliches asymptotisches Verhalten für $E_{\perp} \rightarrow 0$. Die Beschreibung des Kristalls durch geladene Ionen statt neutraler Atome ist also – wie bei Ne-LiF(001) in Abb. 5.60 – ein deutlich besseres Modell, insbesondere bei $E_{\perp} < 10$ eV. Ein Projektil-Oberfläche-DFT-Potential – wie für He-MgO(001) – stand für Ne-MgO(001) nicht zur Verfügung.

Das Rumpling hat für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung (mit den gemischten Atomketten) keinen Effekt auf die Regenbogenwinkel (gestrichelte Kurven). Für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung ergibt sich bei Berücksichtigung des Rumplings

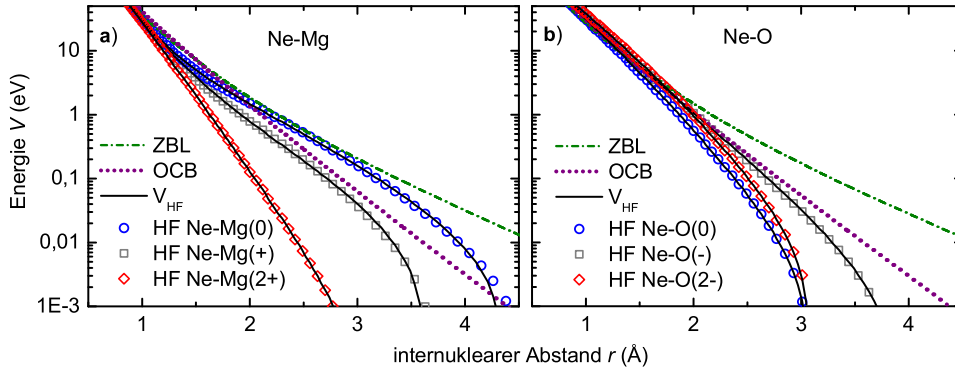


Abb. 5.93: Wie Abb. 5.77 jedoch für die interatomaren Potentiale von a) Ne-Mg und b) Ne-O.

Tab. 5.6: Parameter für die analytische Funktion Gl. (2.14) zur Beschreibung der individuell berechneten Ne-Mg- und Ne-O-HF-Potentiale von Gärtner [54, 55] im in Abb. 5.93 dargestellten Energiebereich.

	i	1	2	3	4
Ne-Mg ⁰	a_i	1,35209	-0,51108	0,46298	-0,03171
	b_i	2,34599	1,12238	0,99127	0,72335
Ne-Mg ⁺	a_i	1,57457	-3,78698	9,85231	-6,97512
	b_i	1,69517	1,27872	1,13880	1,11107
Ne-Mg ²⁺	a_i	9,33261	-8,77619	2,32577	-0,04891
	b_i	4,79570	3,92249	2,46560	1,79536
Ne-O ⁰	a_i	2,71955	-0,29355	7,31284	-3,42353
	b_i	1,84417	1,47200	4,71654	2,36793
Ne-O ⁻	a_i	-0,27174	0,35989	0,80815	-0,49464
	b_i	1,38771	1,33846	1,28184	1,19700
Ne-O ²⁻	a_i	-6,10149	5,71275	6,57901	-3,06936
	b_i	2,23414	3,42056	1,67538	1,55080

aus Abschn. 5.2.7 eine Verschiebung zu größeren θ_{rb} für den äußeren Regenbogen (1. RB) und zu kleineren θ_{rb} für den inneren Regenbogen (2. RB). Daher verringert sich die Übereinstimmung für den äußeren Regenbogen, während sie sich für den inneren Regenbogen gleichzeitig verbessert.

Zusammenfassung: Die Regenbogenwinkel bei der Streuung von Ne-Atomen an MgO(001) lassen sich mit der klassischen Simulation in Kontinuumsnäherung auf Basis von Ne-Mg²⁺- und Ne-O²⁻-HF-Paarpotentialen deutlich besser beschreiben, als mit Paarpotentialen für neutrale Atome. Die experimentellen Ergebnisse werden aber etwas überschätzt.

Kapitel 6

Beugung an Metalloberflächen

Im vorherigen Kapitel wurde gezeigt, dass bei Streuung schneller Atome an den Isolator-Oberflächen LiF(001) und MgO(001) Beugungseffekte zu beobachten sind. Die Erhaltung der Kohärenz wird dabei der Bandlücke dieser Materialien zugeschrieben, da unterhalb einer bestimmten Schwellenenergie keine elektronischen Anregungen auftreten können [61, 273]. Die Elektronen einer Metalloberfläche können hingegen ohne eine Schwelle angeregt werden. Sollten auch bei Streuung schneller Atome an Metalloberflächen Beugungseffekte nachweisbar sein, dann handelt es sich um ein allgemeines Phänomen und Beugung schneller Atome sollte prinzipiell bei allen Materialklassen möglich sein.

6.1 Notwendige Bedingungen für Beugung an Metalloberflächen

Bei der Streuung schneller He-Atome an reinen Fe(110)- und Be(0001)-Oberflächen konnten keine Beugungsmuster gefunden werden, obwohl auch im Energiebereich um $E_0 = 0,5 \text{ keV}$ danach gesucht wurde. Lediglich das Beugungsmaximum nullter Ordnung war für He präsent und als solches durch sein schmales Profil zu erkennen und von einer klassischen Streuverteilung zu unterscheiden (siehe Abb. 7.4b auf S. 287). In den vor den Beugungsexperimenten an LiF(001) aufgenommenen Intensitätsverteilungen bei Streuung von He-Atomen mit $E_0 > 2 \text{ keV}$ an Al(111), Al(100), Cu(111) und Ag(111) fanden sich keine Anzeichen für Beugungseffekte.

Auch bei der Streuung von Atomen mit thermischen Energien treten an Metalloberflächen im Gegensatz zur Streuung an Ionenkristal-

len kaum Beugungserscheinungen auf. Tatsächlich dauerte es trotz verschiedener, teils raffinierter Versuche [407, 408] mehr als 40 Jahre vom Nachweis der Beugung von Atomen an Alkalihalogeniden durch Estermann und Stern [6] bis auch Beugungseffekte bei der Streuung von Atomen an einer sauberen Metalloberfläche nachgewiesen werden konnten [409]. Zuvor wurde bereits an einer Kohlenstoff-Überstruktur auf W(110) Beugung mit He- und D₂-Strahlen beobachtet [410, 411], während umgekehrt nach dem epitaktischen Aufwachsen von einigen Lagen Ag(001) auf LiF(001) die zuvor präsenten Beugungsmaxima bis auf die nullte Beugungsordnung verschwanden [407].

Für das Fehlen klarer Beugungseffekte an sauberen Metalloberflächen, d.h. Streuung ohne Beugungsmaxima höherer Ordnung, wurden im Bereich thermischer Energien folgende mögliche Ursachen diskutiert [139, 174, 409, 412], die genauso als Grund für das Fehlen höherer Beugungsordnungen bei Streuung schneller Atome in Frage kommen:

- (I) Die thermische Auslenkung der Atome der Oberfläche ist bei Metallen aufgrund der niedrigeren Oberflächen-Debye-Temperaturen erhöht, der Debye-Waller-Faktor Gl. (2.41) daher klein und die Intensität der Bragg-Reflexe reduziert.
- (II) Die Beugung wird unterdrückt, weil im Gegensatz zu den Isolatoren die Projektilatome von Metalloberflächen angezogen werden können.
- (III) Bei Metallen sind elektronische Anregungen möglich, die bei Isolatoren unterdrückt werden.
- (IV) Die Korrugation des Potentials ist bei Metall-Oberflächen zu gering, um Projektile in die zu höheren Ordnungen korrespondierenden größeren Ablenkwinkel zu streuen.

Die Oberflächen-Debyetemperatur ist zwar bei Ni(110) oder Fe(110) mit $\Theta_{D\perp} = 325$ K [413] bzw. $\Theta_{D\perp} = 225$ K [414] tatsächlich etwas geringer als bei LiF(001), wo Werte zwischen $\Theta_{D\perp} \approx 330$ K [175] und $\Theta_{D\perp} \approx 480$ K [378] gemessen wurden, jedoch ist die mittlere thermische Auslenkung der Oberflächenatome aufgrund der höheren Atommasse M_G in Gl. (2.43) bei diesen Metalloberflächen geringer als bei den leichten Atomen von LiF. Das Argument (I) kann also nicht die Ursache für den großen Unterschied zwischen dem Beugungsvermögen von Metall- und Isolator-Oberflächen sein.

Ein anziehendes Potential kann als Ursache dafür interpretiert werden, warum die reaktiven H-Atome an MgO(001) – im Gegensatz zu H₂-Molekülen – keine Beugungsmuster zeigen (siehe Abb. 5.66a und

5.66b auf S. 217). Das anziehende Bildladungspotential ist die Ursache für das Fehlen von Beugungslinien bei Streuung von He^+ -Ionen. Für die inerten He^0 -Atome sollten anziehende Kräfte aber vernachlässigbar klein und Punkt (II) daher irrelevant sein.

Bislang wurde Punkt (III) – die Unterdrückung von elektronischen Anregungen durch die Bandlücke – als Hauptgrund dafür betrachtet, warum bei Streuung schneller Atome überhaupt Beugungseffekte auftreten können. Bei Metallen sollten die möglichen Anregungsprozesse und der daraus resultierende Energieverlust der Projektile jegliche Kohärenz zerstören.

Gegen Punkt (I) bis (III) spricht jedoch, dass das Beugungsmaximum nullter Ordnung in gleicher Weise von den resultierenden Dekohärenzprozessen betroffen sein sollte wie die höheren Ordnungen. Wenn also die nullte Beugungsordnung als solche erkennbar ist, d.h. wenn sie ein nur von der Divergenz des einlaufenden Atomstrahls abhängiges schmales Profil aufweist, dann können die höheren Ordnungen nicht zugleich bis zu ihrem Verschwinden verbreitert sein. Als Grund für die fehlende Intensität in höheren Ordnungen käme dann nur noch Punkt (IV), die zu schwache Korrugation des Potentials, in Frage.

Die Valenzelektronen bei Metallen ähneln in grober Näherung einer Flüssigkeit mit hoher Oberflächenspannung, welche die Korrugation der Oberfläche verringert [412]. In dicht gepackten Metalloberflächen sind die freien Elektronen in der Lage, die Korrugation des Potentials derart herabzusetzen, dass die Äquipotentialflächen unterhalb einer Mindestenergie nahezu flach erscheinen (siehe dazu auch Abschn. 4). Diese Eigenschaft schwindet aber mit abnehmender Packungsdichte [75, 415], d.h. für offene Oberflächen sollte die Korrugation groß genug sein, um Projektile in die zu höheren Beugungsordnungen korrespondierenden größeren Winkel abzulenken.

Tatsächlich ist W(112) – die Fläche an der zum ersten Mal Beugung von Atomen an Metalloberflächen nachgewiesen wurde [409] – eine sehr offene Fläche, d.h. hier haben dicht gepackte Atomketten in der obersten Atomlage einen relativ großen Abstand. Dies ist auch bei der Ni(110)-Oberfläche der Fall, da sich fcc(110) und bcc(112) ähneln. Danach wurde neben W(112) [150, 409] auch an anderen offenen Metalloberflächen wie z.B. Cu(110) [72, 83, 196, 416], Pd(110) [73, 74], Ag(110) [84, 85, 417], Rh(110) [79], NiAl(110) [418] und Ni(110) [69–71, 73, 75, 419] Beugung mit thermischen Atomen beobachtet. Demgegenüber konnte bei Streuung von He-Atomen an dicht gepackten Oberflächen nur die nullte Beugungsordnung beobachtet werden, wie z.B. bei Pt(111) [420], Cu(100) [421, 422] und Ni(100) [423]. Bei der Streuung thermischer He-Atome an der dicht gepackten Ag(111)-Fläche war

Tab. 6.1: Volle Korrugation ζ der 3D-Äquipotentialflächen $V(x, y, z)$ aus HAS-Experimenten und Anzahl deutlicher Beugungsmaxima für Streuung von 63 meV ^4He ($\lambda_{\text{dB}} = 0,57 \text{ \AA}$) an unterschiedlich offenen Metalloberflächen in der Reihenfolge von dicht gepackt bis sehr offen.

Oberfläche	Korrugation ζ (\AA)	Maxima	Referenz
Ni(111)	0,022	1	[440]
Ni(100)	0,015	1	[423]
Ni(110)	0,075	3	[69, 71]
Ni(113)	0,177	8	[68, 428]
Ni(115)	0,6	10	[427]
Au(110)(1 \times 2)	1,5	15	[17]
Pt(110)(1 \times 2)	1,5	15	[77, 78]

zwar die erste Beugungsordnung auflösbar, diese war aber drei Größenordnungen schwächer als das Maximum der nullten Ordnung [424, 425]. Die Korrugation war aus diesen Messungen nicht bestimmbar bzw. wurde zu maximal 0,01 \AA abgeschätzt [75].

Vizinalflächen [426] haben durch ihre gestufte Oberfläche eine sehr hohe Korrugation und zeigen daher viele Beugungsmaxima wie z.B. bei der Streuung von He-Atomen an Ni(115) [427], Ni(113) [68, 428], Rh(311) [429, 430] und an der (113)-, (117)-, (211)- und (511)-Fläche von Cu [416, 426, 431–433]. Die deutlichsten Beugungseffekte zeigen sich aber an rekonstruierten Metalloberflächen wie z.B. Pt(100) [434], Au(110) [17, 187, 435, 436] oder Pt(110) [76–78]. Letztere weisen bei Raumtemperatur eine sogenannte „Missing-Row“- (1×2) -Rekonstruktion [437] auf. Aufgrund des „Fehlens“ jeder zweiten $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Atomkette in der obersten Atomlage ist die Korrugation in der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Ebene sehr hoch [436]. Daher werden Projektile entlang dieser Richtung in große Ablenkwinkel gestreut [154]. Auch Ir(110) [438] und die Pd(110) [439] zeigen eine (1×2) -Rekonstruktion.

Der Zusammenhang zwischen der bei höher indizierten Flächen geringeren Packungsdichte einer Metalloberfläche, deren Korrugation und deren Beugungsvermögen soll am Beispiel verschiedener Ni-Oberflächen mit der Gegenüberstellung in Tab. 6.1 illustriert werden. Während bei dicht gepackten Metalloberflächen die quasifreien Elektronen die Korrugation fast vollständig glätten, verschwindet diese Eigenschaft mit sinkender Packungsdichte [75].

Um den Nachweis zu erbringen, dass Beugung schneller Atome auch an Metalloberflächen möglich ist, muss also eine möglichst offene Oberfläche gewählt werden. Dann ist auch bei kleinen Energien das Potential noch ausreichend korrigiert, um die Projektile weit genug abzulenken,

damit mehrere Beugungsordnungen auftreten können. Dicht gepackte Oberflächen wie bcc(110) und fcc(111) kommen dafür also nicht in Frage. Am besten geeignet wären rekonstruierte Metalloberflächen wie z.B. $(1 \times 2)\text{Au}(110)$ oder $(1 \times 2)\text{Pt}(110)$ (vergl. Tab. 6.1). Falls die Kohärenz für die Beugung schneller Atome an diesen Metallen ausreichend sein sollte, dann wäre das Potential durch die Missing-Row-Struktur stark genug korrigiert, um die Intensität auf mehrere Beugungsordnungen zu verteilen. Man könnte dann genau studieren, in welcher Weise sich die Dekohärenz-Effekte aus Punkt (I) bis (III) auf die Beugungsmuster auswirken, da Punkt (IV) als Grund für das Fehlen höherer Ordnungen ausgeschlossen werden kann.

Aufgrund der Durchführung anderer Experimente unserer AG an Ni(110) [441] war es noch nicht möglich, eine rekonstruierte Metalloberfläche zu untersuchen. Es zeigte sich aber, dass auch Ni(110) gerade noch ausreichend stark korrigiert ist, um zumindest drei Beugungslinien bei Streuung schneller He-Atome beobachten zu können. Damit war der Nachweis erbracht, dass auch an Metallen Beugung schneller Atome möglich ist. Dieses Experiment wird im nächsten Abschnitt vorgestellt.

Im selben Zeitraum gelang es auch Bundaleski *et al.* [29, 33], Beugung schneller Atome an der offenen Ag(110) Oberfläche nachzuweisen. Ag(110) hat zwar die gleiche Struktur wie Ni(110), ist aber aufgrund der ca. 16% größeren Gitterkonstante deutlich stärker korrigiert [33, 85], sodass Beugungseffekte sogar in drei verschiedenen Kristallrichtungen und bis zur Ordnung $n=4$ beobachtbar waren. Bei der Streuung von schnellen He-Atomen an der dicht gepackten Ag(111)-Oberfläche waren hingegen keine Beugungsmuster zu beobachten [233].

6.2 Ni(110)

6.2.1 Struktur und Präparation

Ni-Kristalle haben ein kubisch flächenzentriertes Gitter mit einer Gitterkonstante von $3,52 \text{ \AA}$ [80, 235, 419, 442]. Die Ni(110)-Fläche hat daher die gleiche Struktur wie Al(110) und die Gitterführungsrichtungen dementsprechend die gleichen Bezeichnungen (siehe Abb. 4.1a auf S. 96). Die oberste Atomlage zeigt eine Relaxation zwischen 5% [413] und 9% des Lagenabstandes [443] hin zum Festkörper.

Die hier präsentierten Messungen erfolgten im direkten Anschluss an ein Experiment, in dem die Reinheit der Ni(110)-Oberfläche mittels Auger-Elektronen-Spektroskopie und über die Änderung der Austrittsarbeit genau untersucht wurde [444, 445]. Dabei wurde sichergestellt, dass nach der Präparation der Oberfläche mittels streifendem Sputtern

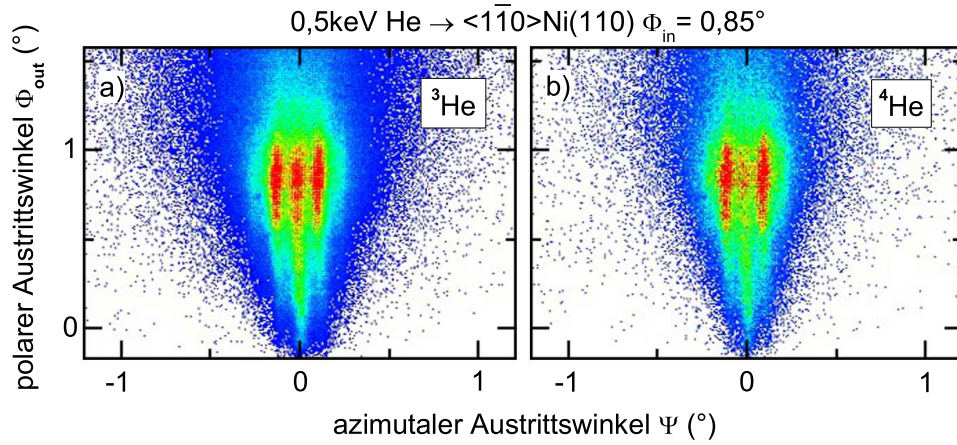


Abb. 6.1: Intensitätsverteilungen für Streuung von a) ^3He - und b) ^4He -Atomen an einer sauberen $\text{Ni}(110)$ -Oberfläche mit $E_0 = 0,5\text{ keV}$ unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 0,85^\circ$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Die projizierten Intensitäten werden in Abb. 6.2a verglichen.

mit 25 keV Ar^+ -Ionen und anschließendem Ausheilen für ca. 10 Minuten bei ca. 580°C eine reine Oberfläche vorliegt [444, 445]. Die Präparation erfolgte hier auf identische Weise. Der Kristall war während des vorangegangenen Experiments beim Ausheilen verspannt worden, sodass die Oberflächennormale so stark gegen die azimutale Drehachse des Manipulators verkippt war, dass keine aussagekräftigen Targetstrom-Kurven aufgenommen werden konnten. Die Zuordnung der Gitterrichtungen war aber aus dem vorangegangenen Experiment [242] bekannt und wurde übernommen. Der Kristall hatte sich in der Halterung derart verspannt, dass die Oberfläche dem Atomstrahl einem Bereich der azimutalen Ausrichtung des Targets nicht mehr zugänglich war. Dies betraf insbesondere den $\langle 001 \rangle$ -Gitterführungs kanal, der – wegen der zweizähligen Symmetrie der Oberfläche – keine symmetrieäquivalenten Richtungen im zugänglichen Bereich azimutaler Ausrichtung hatte. Alle hier präsentierten Ergebnisse konnten später von Dr. Marco Busch und Henrik Grundmann bei einer Wiederholung des Experiments mit einem anderen $\text{Ni}(110)$ -Kristall bestätigt werden [446].

6.2.2 Winkelposition der Beugungslinien

Abb. 6.1 zeigt die mit dem MCP-Detektor aufgenommenen Intensitätsverteilungen für die Streuung von ^3He - und ^4He -Atomen an einer reinen $\text{Ni}(110)$ -Oberfläche mit $E_0 = 0,5\text{ keV}$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. In Abb. 6.1a sind drei Beugungslinien erkennbar, die sich jedoch nur wenig vom Untergrund abheben. Um zu belegen, dass es

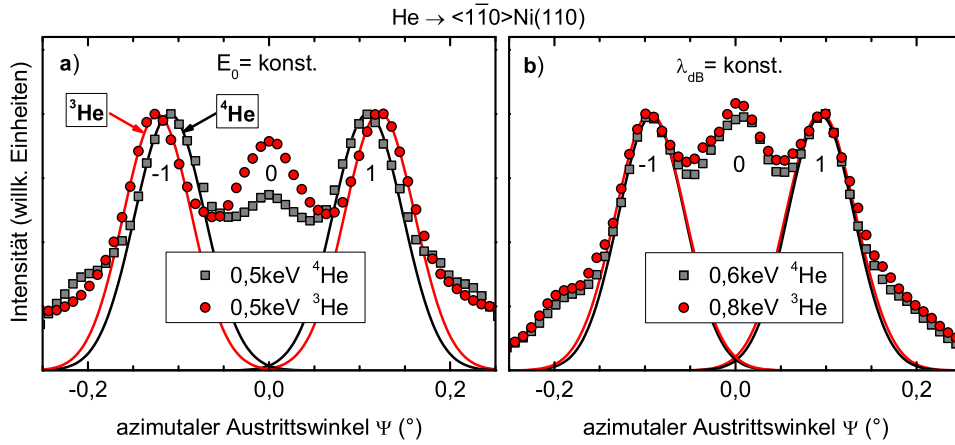


Abb. 6.2: Projizierte Intensität als Funktion des azimutalen Austrittswinkels Ψ für die Streuung von ^3He - (Kreise) und ^4He -Atomen (Quadrate) an einer sauberen Ni(110)-Oberfläche entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung bei a) gleicher Projektilenergie $E_0 = 0,5 \text{ keV}$ und gleichem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 0,85^\circ$ aus Abb. 6.1 und b) gleicher De-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}} = 0,0085 \text{ \AA}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0,69^\circ$. Die Gauß-Kurven sollen das Auge führen und die Verschiebung der Maxima zwischen ^3He und ^4He hervorheben. Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n .

sich eindeutig um Bragg-Reflexe handelt, wurde vom ^3He - auf einen ^4He -Strahl gewechselt, ohne sonstige Parameter zu verändern. Insbesondere Φ_{in} und E_0 sowie die Position aller Blenden sind in Abb. 6.1a und 6.1b identisch. Da die beiden Isotope am gleichen Potential gestreut werden, sind die klassischen Trajektorien in beiden Fällen gleich. Die De-Broglie-Wellenlängen λ_{dB} unterscheiden sich jedoch, was zu etwas unterschiedlichen Phasen sowie Beugungsmustern für ^3He und ^4He führt. In Abb. 6.2a werden die Projektionen der Intensität für ^3He und ^4He aus Abb. 6.1 miteinander verglichen. An die Maxima wurden Gauß-Kurven angepasst, um deren Verschiebung hervorzuheben. Tatsächlich ist der Beugungslinienabstand Δz bei ^4He gemäß Bragg-Bedingung Gl. (5.1) geringer als bei ^3He . Bei gleicher De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} fallen die Positionen der Maxima hingegen zusammen, so wie in Abb. 6.2b im Vergleich für Streuung von ^4He mit $E_0 = 0,6 \text{ keV}$ und ^3He mit $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ unter sonst gleichen Bedingungen zu sehen.

Neben der Verschiebung der Position der Bragg-Reflexe erkennt man in Abb. 6.1 und Abb. 6.2a, dass sich auch deren relative Intensitäten bei ^3He und ^4He unterscheiden. Während in Abb. 6.2a die drei Bragg-Reflexe für ^3He ähnlich hoch sind, ist die relative Intensität der Ordnung $n = 0$ für ^4He geringer. Diese Effekte werden in Abschn. 6.2.3 im Detail diskutiert.

Da nur drei Beugungslinien auftraten, die zudem noch einen Ab-

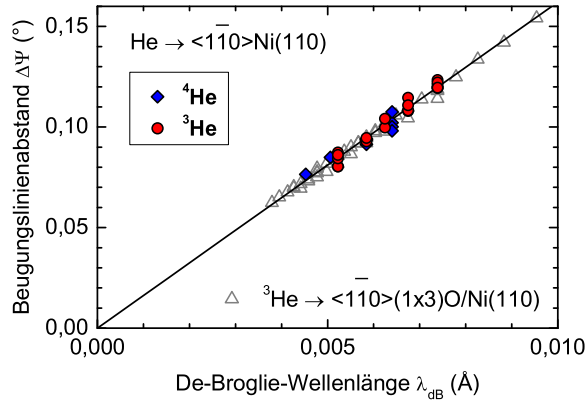


Abb. 6.3: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion von λ_{dB} für Streuung von ^3He -Atomen (rote Kreise) und ^4He -Atomen (blaue Rauten) an einer sauberen Ni(110)-Oberfläche entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Schwarze Linie: beste Anpassung einer linearen Funktion. Zum Vergleich ist $\Delta\Psi$ für Streuung an einer $(1 \times 3)\text{O}/\text{Ni}(110)$ -Überstruktur entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung dargestellt (Dreiecke).

stand im Bereich von nur 15 Detektor-Kanälen haben, fiel die Inhomogenität der örtlichen Auflösung des MCP-Detektors besonders ins Gewicht. Die globale Eichung bezüglich der x-Kanäle des MCP-Detektors ist mit ihren ca. zwei Kanälen Abweichung (siehe Abb. 3.4b auf S. 83) zu ungenau. Der Detektor musste daher genau in dem Bereich, wo die Beugungslinien erschienen – so wie in Abschn. 3.1.3.3 beschrieben – lokal geeicht werden. In Abb. 6.3 ist der Beugungslinienabstand Δz für verschiedene Projektilenergien für ^3He - und ^4He -Projektilen als Funktion von λ_{dB} dargestellt. Die Datenpunkte folgen dem linearen Zusammenhang von Gl. (5.2). Aus dem Anstieg $s = 16,214^\circ/\text{\AA}$ der unter der Nebenbedingung $\Delta\Psi(\lambda_{dB} = 0) = 0$ angepassten linearen Funktion (schwarze Linie), ergibt sich die Breite d des $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Gitterführungschanals zu $d = 180^\circ/s\pi = (3,53 \pm 0,08) \text{\AA}$. Dies stimmt gut mit dem theoretischen Wert von $d_{cal} = 3,52 \text{\AA}$ überein.

Zusammenfassung: Beugung schneller Atome ist auch an Metalloberflächen prinzipiell möglich.

6.2.3 Intensität der Beugungsmaxima

Obwohl bei der Beugung von He-Atomen an Ni(110) kaum mehr als drei Beugungsmaxima präsent sind, ist die Modulation deren relativer Intensitäten mit der Energie deutlich zu erkennen und auswertbar. In Abb. 6.4a und 6.4b sind exemplarisch zwei Intensitätsverteilungen für die Streuung von ^3He -Atomen an Ni(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -

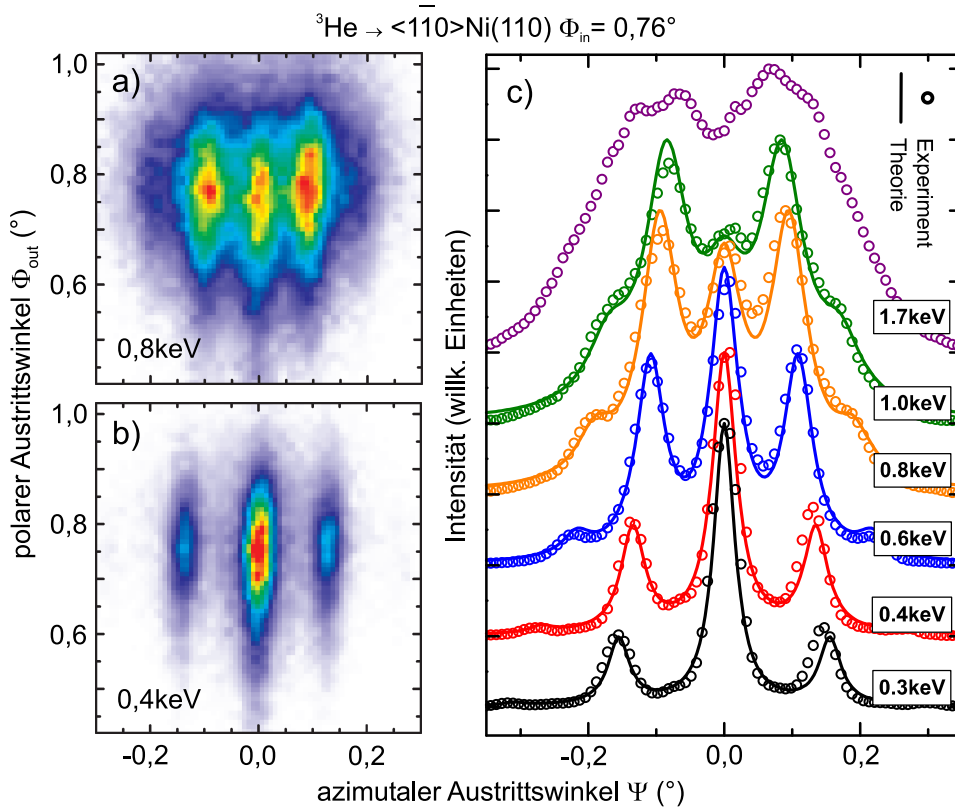


Abb. 6.4: Intensitätsverteilungen für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an Ni(110) unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ entlang $\langle 110 \rangle$. Links: Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Intensitätsverteilungen für a) $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ und b) $E_0 = 0,4 \text{ keV}$. Rechts: Projizierte Intensität als Funktion des azimuthalen Austrittswinkels Ψ für verschiedene Projektilenergien E_0 von 0,3 keV bis 1,7 keV (Kreise) und beste Anpassungen einer Summe von Lorentz-Funktionen, deren relative Höhe durch Gl. (2.76) bestimmt wird (Kurven). Die so ermittelten Werte Δz der besten Anpassung sind in Abb. 6.5 dargestellt.

Richtung unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 0,76^\circ$ bei $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ und $0,4 \text{ keV}$ gezeigt. Während die drei auftretenden Bragg-Reflexe in Abb. 6.4a ähnlich intensiv sind, dominiert in Abb. 6.4b die Beugungsordnung $n = 0$. Abb. 6.4c zeigt die normierte projizierte Intensität der Intensitätsverteilungen wie in Abb. 6.4a und 6.4b als Funktion des azimuthalen Austrittswinkels Ψ für verschiedene Energien E_0 (Kreise). Die Äquipotentialflächen des effektive Potentials zwischen He und der Ni(110)-Oberfläche können im relevanten Energiebereich als sinusförmig betrachtet werden [419]. Daher kann auch in diesem Fall die Lösung basierend auf Bessel-Funktionen nach Gl. (2.76) genutzt werden, um die Intensitätsverteilung anzupassen und die Korrugation zu ermitteln.

Die Kurven in Abb. 6.4c sind eine Überlagerung von Lorentz-Funk-

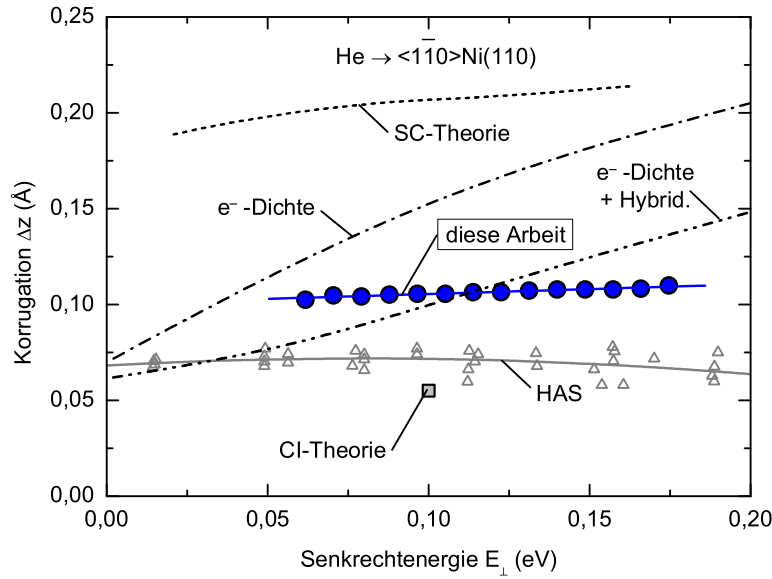


Abb. 6.5: Korrugation Δz der He-Ni(110)-Äquipotentialflächen orthogonal zur $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung als Funktion von E_{\perp} . Blaue Kreise: aus der besten Anpassung von J_n^2 nach Gl. (2.76) an die Beugungsmuster in Abb. 6.4c. Durchgezogene blaue Gerade: beste Anpassung einer linearen Funktion. Graue Dreiecke: Ergebnisse aus der Streuung thermischer He-Atome (HAS) von Rieder *et al.* [69, 71]; die durchgezogene graue Kurve soll das Auge führen. Zum Vergleich sind die Ergebnisse der selbstkonsistenten Rechnung (SC) von Drakova *et al.* [447] (gestrichelte Kurve), der Konfigurations-Wechselwirkungs-Rechnung (CI) von Beckmann *et al.* [442] (Quadrat) und die Korrugation eines zur Elektronendichte von Ni(110) proportionalen Potentials ohne [80] (Strich-Punkt-Kurve) und mit [448] (Punkt-Punkt-Strich-Kurve) Berücksichtigung von Hybridisierung eingezeichnet.

tionen, deren Position durch die Bragg-Bedingung Gl. (5.1) und deren Amplitude durch die Lösung basierend auf Bessel-Funktionen J_n^2 nach Gl. (2.76) gegeben sind. Die Halbwertsbreite der zu verschiedenen Ordnungen korrespondierenden Lorentz-Kurven ist gleich. Sie steigt mit wachsendem E_0 wie die Breite der Beugungslinie $n = 0$ bei Streuung in Random-Richtung (Abb. 6.6). Die azimuthale Divergenz des einfallenden Strahls wurde durch eine dritte vertikale Blende verringert, um die Bragg-Reflexe besser trennen zu können.

Die sich aus der besten Anpassung an die Intensität der Beugungsmaxima ergebende Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ der He-Ni(110)-Äquipotentialflächen orthogonal zur $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung ist in Abb. 6.5 als Funktion der Senkrechterenergie dargestellt (blaue Kreise). Die beste Anpassung einer linearen Funktion (blaue Gerade) liefert eine fast konstante Korrugation von $\Delta z/\text{\AA} = 0,1 + 0,06E_{\perp}/\text{eV}$ für $0,06 \text{ eV} < E_{\perp} < 0,17 \text{ eV}$. Die Unsicherheit aufgrund der Harte-Wand-Näherung wird hierbei als ge-

ring eingeschätzt, da Abweichungen von dieser Näherung nur dann auftreten, wenn sich die Korrugation Δz stark mit E_{\perp} ändert (siehe Abschn. 2.3.7) und da Gl. (2.76) im Grenzfall kleiner Korrugation exakt wird [139, 179].

Zum Vergleich sind in Abb. 6.5 die Ergebnisse der Streuung thermischer He-Atome (HAS) an Ni(110) von Rieder *et al.* [69, 71] ebenfalls als Funktion von E_{\perp} eingezeichnet (Dreiecke). Da bei Ni(110) die Korrugation entlang der dicht gepackten $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Atomketten vernachlässigbar gering ist [75], erscheint die Oberfläche eindimensional korrigiert [17]. Die Korrugation des entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Atomketten gemittelten Potentials Δz und die Korrugation des 3D-Potentials ζ unterscheiden sich also kaum, daher sind in diesem Fall die Werte direkt miteinander vergleichbar.

Auch die HAS-Daten zeigen eine fast konstante Korrugation, sie liegen aber mit $(0,075 \pm 0,005) \text{ \AA}$ [69, 71] etwas unterhalb des Wertes aus der Beugung schneller Atome. Es zeigte sich jedoch, dass die ermittelte Korrugation aufgrund der Harte-Wand-Näherung bei der Analyse der HAS-Beugungsmuster vom Einfallswinkel abhängt [69, 71, 73]. Bei senkrechtem Einfallswinkel verschwindet der Unterschied zwischen der in Harte-Wand-Näherung ermittelten Korrugation und dem Ergebnis aus der Analyse unter Berücksichtigung eines weichen Potentials [71]. Dem senkrechten Einfallswinkel bei der Streuung thermischer Atome entspricht die exakte Ausrichtung des Atomstrahls bezüglich der Atomketten bei der streifenden Streuung, d.h. es gibt anfänglich keine Bewegungskomponente in x-Richtung (siehe z.B. Abb. 2.8a auf S. 29). Eine lineare Extrapolation der vom Einfallswinkel abhängigen HAS-Daten in Fig. 4 aus Ref. [69] zu senkrechtem Einfallswinkel ergibt eine größere Korrugation von $(0,09 \pm 0,005) \text{ \AA}$. Dieser Wert stimmt deutlich besser mit der hier ermittelten Korrugation überein.

Die Korrugation des axial gemittelten Potentials aus der Superposition von He-Ni-HF-Potentials von Gärtner [55] ergibt $\Delta z \approx 0,8 \text{ \AA}$ und liegt daher oberhalb des in Abb. 6.5 dargestellten Bereiches. Eine Superposition von Paarpotentialen ist hier nicht adäquat. Eine Diskussion dazu folgt in Abschn. 6.2.5.1.

Die selbstkonsistente (SC) Berechnung des He-Ni(110)-Potentials von Drakova *et al.* [447] ergab zwar eine konstante Korrugation im relevanten Energiebereich (gestrichelte Kurve in Abb. 6.5), jedoch ist diese in jenem Modell etwa doppelt so groß wie der experimentell bestimmte Wert.

Beckmann *et al.* [442] folgerten aus der Berechnung eines He-Ni₁₄-Clusters mit der Methode der Konfigurations-Wechselwirkung (CI), dass die deutlich geringere Korrugation des He-Ni(110)-Potentials auf

dem zuvor nicht richtig berücksichtigten Beitrag der 3d-Orbitale der Ni-Atome zurückzuführen ist. In diesem Modell ergibt sich eine Korrugation von $\Delta z \approx \zeta = 0,055 \text{ \AA}$ bei 0,1 eV (Quadrat in Abb. 6.5) und 0,07 \AA bei 0,25 eV. Diese Werte liegen unterhalb der hier ermittelten Korrugation.

Die Korrugation des aus der zur Elektronendichte über die Esbjerg-Nørskov-Beziehung Gl. (2.18) abgeleiteten He-Ni(110)-Potentials ist mit ca. 0,16 \AA [82] zu groß. Im Gegensatz zu den experimentellen Ergebnissen steigt die Korrugation in diesem Modell mit zunehmender Energie [80] (Strich-Punkt-Kurve in Abb. 6.5). Die Esbjerg-Nørskov-Relation ergab bei anderen Systemen wie z.B. He-Cu(110) eine gute Übereinstimmung mit den Werten aus HAS-Experimenten [80, 83]. Da aber weder die Abweichungen von der Harte-Wand-Näherung noch die Vernachlässigung von nicht elastischen Prozessen oder thermischen Schwingungen einen so großen Effekt auf die Beugungsmuster haben [195], ist also entweder die Berechnung der Dichte der Valenzelektronen von Ni(110) nicht ausreichend genau oder die Abhängigkeit des abstoßenden Potentials von der Elektronendichte ist in diesem Fall komplexer als ein linearer Zusammenhang [71, 195]. Auch verschiedene Modifikationen des Esbjerg-Nørskov-Potentials konnten die Diskrepanz zwischen Elektronendichte-Korrugation und experimentell bestimmter He-Ni(001)-Korrugation nicht auflösen [449]. Wird eine Hybridisierung des He-Atoms vor der Ni(110)-Oberfläche mit in Betracht gezogen, so verringert sich die Korrugation auf die im Experiment beobachtete Größe [448] (Punkt-Punkt-Strich-Kurve in Abb. 6.5). Jedoch zeigt auch dieses Modell eine Energieabhängigkeit.

Zusammenfassung: Die aus der Intensität der Beugungsmaxima bestimmte Korrugation des He-Ni(110)-Potentials ist näherungsweise unabhängig von der Senkrechterenergie in Übereinstimmung mit den Beobachtungen bei der Streuung thermischer He-Atome. Die leichte Diskrepanz zu HAS-Experimenten mit der hier abgeleiteten Korrugation von $\Delta z \approx 0,10 \text{ \AA}$ ist wahrscheinlich auf eine systematischen Unterschätzung durch die Harte-Wand-Näherung in den Analysen der HAS-Daten zurückzuführen. Potentiale aus der Superposition von He-Ni-Paarpotentialen sind mit den Beugungsmustern nicht vereinbar. Die verschiedenen verfügbaren theoretischen Modelle können die Experimente nur in grober Näherung wiedergeben, ein He-Ni(110)-DFT-Potential lag nicht vor.

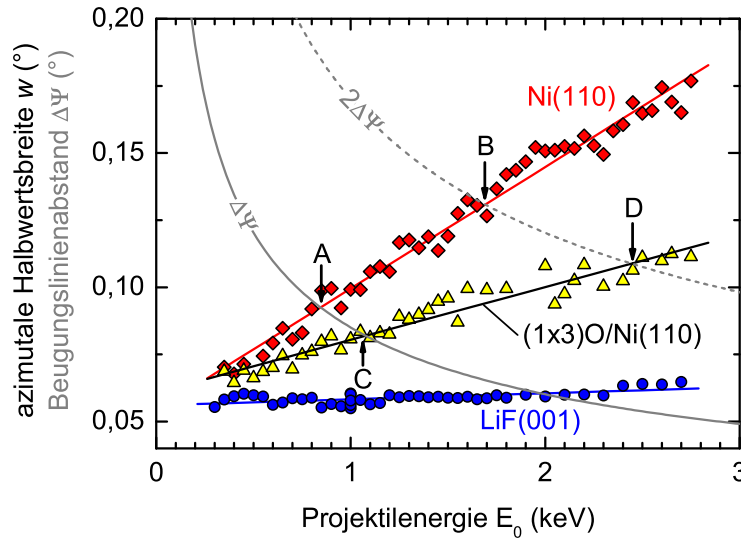


Abb. 6.6: Azimutale Halbwertsbreite w der Beugungslinien $n = 0$ als Funktion der Projektilenergie E_0 für Streuung von ^3He -Atomen an reinem Ni(110) (rote Rauten), (1x3)O/Ni(110) (gelbe Dreiecke) und LiF(001) (blaue Kreise) unter $\Phi_{\text{in}} \approx 0,7^\circ$ entlang einer beliebigen hochindizierten Richtung. Die Geraden repräsentieren die beste Anpassung einer linearen Funktion. Die Kurven geben den einfachen und doppelten theoretischen Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ bzw. $2\Delta\Psi$ gemäß Bragg-Beziehung Gl. (5.2) für Beugung von ^3He -Atomen an den $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Atomketten von Ni(110) an. Die Punkte A bis D definieren die Grenzen zwischen Beugung und überwiegend klassischer Streuung (siehe Text).

6.2.4 Übergang von Beugung zu klassischer Streuung

Nach dem Nachweis der Beugung schneller Atome an Ni(110) wurde untersucht, in welchem Bereich der Streubedingungen die Dekohärenzprozesse gering genug sind, um Beugungsmuster an Metallen beobachten zu können. Bereits in Abb. 6.4 war zu erkennen, wie die Beugungslinien mit steigender Projektilenergie E_0 immer dichter zusammenkommen und ihre Breite immer weiter zunimmt, bis sich schließlich bei $E_0 = 1,7$ keV eine klassische Verteilung ergibt. Die steigende Verbreiterung kann dem wachsenden Einfluss von Dekohärenzprozessen zugeschrieben werden.

Um die Verbreiterung genauer zu studieren, wurde die azimutale Halbwertsbreite w des Beugungsreflexes $n=0$ bei Streuung von He-Atomen an Ni(110) bei konstantem Einfallswinkel $\Phi_{\text{in}} = 0,66^\circ$ als Funktion von E_0 vermessen. Da w unabhängig von der Gitterführungsrichtung und der Ordnung n ist, konnte eine Random-Richtung gewählt werden – wie in Abb. 5.8 auf S. 128 – damit die Bragg-Maxima $n = \pm 1$ das Profil von $n=0$ nicht beeinflussen. In Abb. 6.6 sind die Werte w

aus diesem Experiment als rote Rauten dargestellt. Eine lineare Anpassung (rote Gerade) ist eine gute Näherung im dargestellten Bereich von E_0 . Der Anstieg dieser Geraden entspricht dem Anstieg der Breite der Lorentz-Kurven in Abb. 6.4c. Der Achsenabschnitt wird durch die Divergenz des einlaufenden Atomstrahls bestimmt ($w_d = 0,059^\circ$; vergl. Abb. 5.9). Die volle graue Kurve in Abb. 6.6 repräsentiert den Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ nach Gl. (5.2) für Beugung von ^3He -Atomen an den Atomketten der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung von Ni(110). Bis zum Punkt A bei $E_0 \approx 0,85 \text{ keV}$ sind benachbarte Bragg-Maxima gut getrennt, darüber überlappen sie und die Verteilungen können nach der Definition aus Abschn. 5.1.3 als überwiegend klassisch bezeichnet werden. Da die Intensität der Ordnung $n = 0$ mit steigendem E_0 aber abnimmt (vergl. Abb. 6.4c), trägt diese immer weniger zum Untergrund bei $n = \pm 1$ bei, sodass der Abstand $2\Delta\Psi$ zwischen den Beugungslinien $n = -1$ und $n = 1$ als eine obere Grenze des Übergangs von Beugung zu klassischer Streuung definiert werden kann. Die Kurve für $2\Delta\Psi(E_0)$ ist in Abb. 6.6 grau gestrichelt dargestellt. Wenn $2\Delta\Psi$ ab dem Punkt B bei $E_0 \approx 1,7 \text{ keV}$ kleiner als w wird, ist die Verteilung auch dann überwiegend klassisch, wenn die Beugungsordnung $n = 0$ völlig ausgelöscht sein sollte. Tatsächlich sind in Abb. 6.4c bei $E_0 \approx 1,7 \text{ keV}$ keine Bragg-Maxima mehr erkennbar.

Zum Vergleich sind in Abb. 6.6 auch die Breiten w bei Streuung von He-Atomen an LiF(001) eingezeichnet (blaue Kreise). Diese sind deutlich geringer als beim Ni(110). Die mittlere thermische Auslenkung der Oberflächenatome der Ni(110)-Oberfläche ist aufgrund der höheren Atommassen M_G nach Gl. (2.43) trotz etwas geringerer Oberflächen-Debyetemperatur $\Theta_{D\perp} = 325 \text{ K}$ [413] kleiner als für die leichten Atome der LiF(001)-Oberfläche, wo $\Theta_{D\perp} \approx 330 \text{ K}$ [175] und $\Theta_{D\perp} \approx 480 \text{ K}$ [378] gemessen wurde. Mit dem Debye-Waller-Faktor Gl. (2.41) und Gl. (2.100) lässt sich der unterschiedliche Anstieg der Breite $w(E_0)$ also nicht erklären. Die Kohärenz bleibt beim Streuprozess an LiF(001) deutlich besser erhalten, weil die elektronischen Anregungen durch die Bandlücke unterdrückt werden. Metalle hingegen können durch binäre Stöße zwischen dem Projektil und den Leitungselektronen ohne eine Schwelle elektronisch angeregt werden [102, 450]. Bei der Streuung von H-Atomen an LiF(001) sinkt die Kohärenz mit E_0 in gleicher Weise, wie die elektronischen Anregungen zunehmen (siehe Abb. 5.17 S. 138). Daraus kann man schlussfolgern, dass auch bei Streuung von He-Atomen an Ni(110) die Kohärenz aufgrund elektronischer Anregungen mit E_0 sinkt. Die Anregung von Plasmonen kann man dabei aber ausschließen, da die Geschwindigkeit der Projektile dafür zu gering ist [451].

Wird eine $(1 \times 3)\text{O}$ -Überstruktur auf der Ni(110)-Oberfläche präpa-

riert, dann zeigen sich schmalere Beugungslinien¹ als bei der Streuung an der unbedeckten Oberfläche (gelbe Dreiecke in Abb. 6.6). Die Breite des $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Gitterführungschanals ändert sich dabei nicht [242, 452], sodass der Beugungslinienabstand so groß wie beim unbedeckten Ni(110) ist (Dreiecke in Abb. 6.3). Daher sind die Beugungsmuster bei der Streuung an der mit O-Adsorbatatomen bedeckten Oberfläche besser auflösbar als an der unbedeckten Metalloberfläche. Die Grenzen des Übergangs von Beugung zu klassischer Streuung verschieben sich zu höheren E_0 (von Punkt *A* zu *C* bzw. von *B* zu *D* in Abb. 6.6). Stöße zwischen dem Projektil und den Elektronen des Metalls werden durch eine Adsorbatschicht unwahrscheinlicher. Dies könnte die Erhöhung der Kohärenz im Vergleich zur Streuung an unbedecktem Ni(110) erklären. Es sind flugzeitaufgelöste Messungen zur Bestimmung des Energieverlusts der Projektile geplant, um diesen Sachverhalt zu untersuchen. Erste Messungen dieser Art wurden von Bundaleski *et al.* [29, 33] durchgeführt. Den Zusammenhang zwischen Kohärenzgrad und Energieverlust konnten diese Autoren jedoch nicht aufklären.

Würden sich die Beugungslinien bei Ni(110) in gleicher Weise verbreitern wie beim LiF(001), dann wären die Bragg-Maxima selbst bei $E_0 = 2$ keV noch deutlich getrennt (siehe Abb. 6.6). Aufgrund des bei höherer Energie größeren Regenbogenwinkels würden dann deutlich mehr Beugungsmaxima auftreten. Bei hohen Energien überdecken aber die wegen der möglichen elektronischen Anregungsprozesse inkohärent gestreuten Atome die Bragg-Maxima. Eine Diskussion zu diesem Wechselspiel zwischen den notwendigen Bedingungen für die Beugung folgt in Abschn. 6.2.5.1.

Zusammenfassung: Bei der Beugung schneller Atome an Metallen sind Dekohärenzprozesse stärker ausgeprägt als bei Isolatoren. Dieser Unterschied kann nicht auf die thermischen Auslenkungen der Atome der Oberfläche zurückgeführt werden. Die verringerte Kohärenz kann mit elektronischen Anregungen bei binären Stößen zwischen dem Projektil und den Elektronen des Metalls erklärt werden. Eine Adsorbatschicht kann die Kohärenz erhöhen.

¹Die Experimente zur Beugung an $(1 \times 3)\text{O}/\text{Ni}(110)$ - und $(1 \times 2)\text{O}/\text{Ni}(110)$ -Überstrukturen wurden von Dr. M. Busch und H. Grundmann mit einem neuen Ni(110)-Kristall reproduziert. Die Ergebnisse sind in Ref. [446] dokumentiert. Daher wird in dieser Arbeit auf eine Darstellung verzichtet.

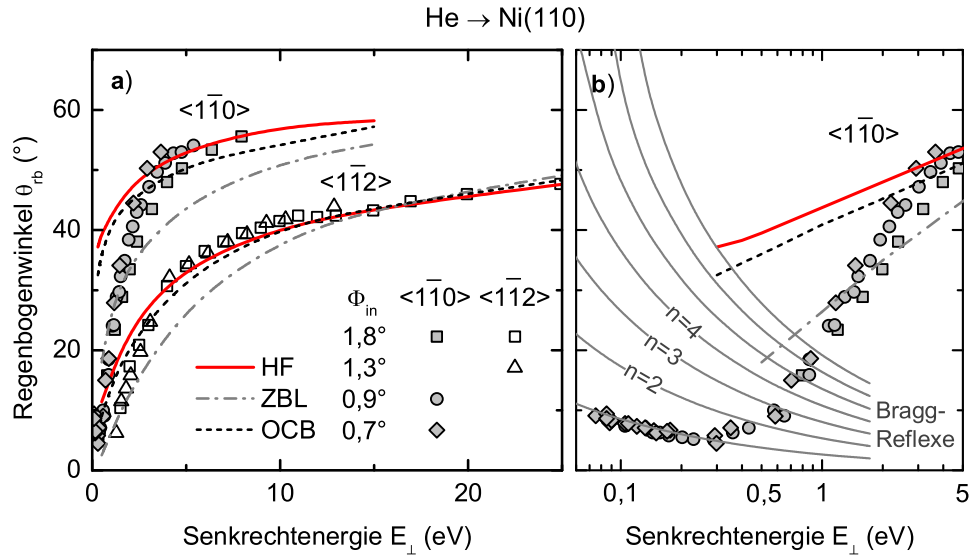


Abb. 6.7: **a)** Regenbogenwinkel θ_{rb} als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} für Streuung von ^3He -Atomen an Ni(110) unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - (graue Symbole) und $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung (offene Symbole) im Vergleich mit den Ergebnissen der klassischen Simulation auf Basis des He-Ni-HF-Potentials von Gärtner (rote Kurve), des ZBL-Potentials (Strich-Punkt-Kurve) und des OCB-Potentials (gestrichelte Kurve). **b)** Halblogarithmische Darstellung der Daten für $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ aus a) für $E_{\perp} < 5 \text{ eV}$ und theoretische Position der Bragg-Reflexe für $1 \leq n \leq 7$ (graue Kurven).

6.2.5 Regenbögen und Potentiale

6.2.5.1 He-Ni(110)

In Abb. 6.7a sind die Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von He-Atomen an Ni(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (graue Symbole) und einer $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung (offene Symbole) als Funktion der Senkrechterenergie E_{\perp} dargestellt. Dabei ist θ_{rb} im Rahmen der Messgenauigkeit unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} und damit von der Projektilenergie E_0 . Zum Vergleich sind die theoretischen Positionen der Regenbogenwinkel aus der klassischen Trajektorien-Simulation basierend auf der Superposition von He-Ni-Paarpotentialen als Kurven eingezeichnet. Die Relaxation der obersten Lage der Ni(110)-Oberfläche [413, 443] hatte dabei kaum Auswirkungen auf das Ergebnis der Trajektorien-Simulation. Die zugrunde liegenden interatomaren Potentiale werden in Abb. 6.8a miteinander verglichen. Das ZBL-Potential, welches auf HF-Potentialen basiert, ist keine gute Näherung für das von Gärtner [54, 55] individuell für He-Ni berechnete HF-Potential. Das OCB-Potential weicht zwar weniger ab, ist aber auch keine gute Näherung. Die berechne-

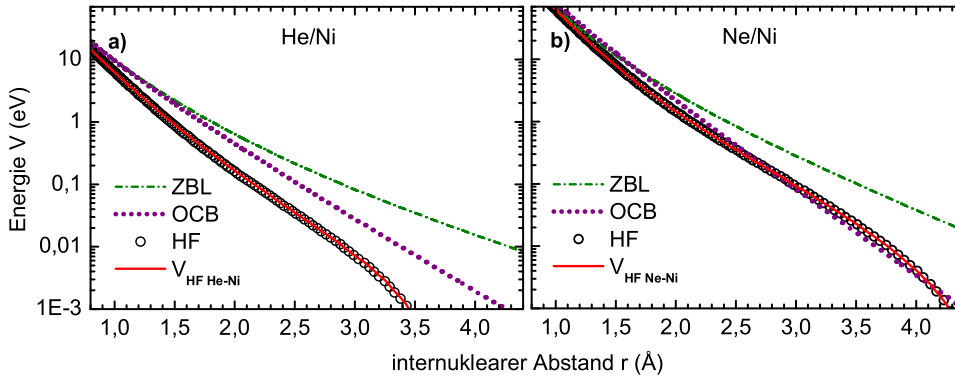


Abb. 6.8: Interatomare Potentiale für a) He-Ni und b) Ne-Ni. ZBL-Potential [57] (grüne Strich-Punkt-Kurve), OCB-Potential [49] (gepunktete Kurve), HF-Potential von Gärtner [54, 55] (offene Kreise) mit Anpassung einer analytischen Funktion V_{HF} nach Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 6.2 (rote Kurve).

Tab. 6.2: Parameter für die analytische Funktion Gl. (2.14) zur Beschreibung der individuell berechneten HF-Potentiale von Gärtner [54, 55].

He-Ni	a_i	-0,07599	0,17726	-0,18723	0,60394
	b_i	0,75251	0,85054	1,11313	1,63693
Ne-Ni	a_i	0,47754	-1,12416	1,23887	-0,01363
	b_i	1,22567	1,41697	1,71559	0,87027
Ar-Ni	a_i	-0,08841	0,16822	-0,17391	0,38263
	b_i	0,780147	0,840824	1,055019	1,432398

ten Punkte des HF-Potentials können im dargestellten Energiebereich durch Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 6.2 approximiert werden (rote Kurve in Abb. 6.8a).

Während die Regenbogenwinkel vom ZBL-Potential unterschätzt werden (Strich-Punkt-Kurve in Abb. 6.7a), können OCB- und HF-Potential diese im Bereich $E_{\perp} > 3 \text{ eV}$ gut beschreiben. Die Superposition von Paarpotentialen ist im für die Beugung schneller He-Atome relevanten Bereich $E_{\perp} < 3 \text{ eV}$ jedoch keine gute Näherung mehr. Abb. 6.7b zeigt eine halblogarithmische Darstellung der Daten für $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ für den Bereich $E_{\perp} < 5 \text{ eV}$ zusammen mit den Bragg-Winkeln nach Gl. (2.62) für Ordnungen $1 \leq n \leq 7$. Erst ab $E_{\perp} < 0,5 \text{ eV}$ sind diskrete Beugungslinien zu beobachten. Dort ist der Regenbogenwinkel jedoch bereits so klein, dass nur noch die Ordnungen $n = \pm 1$ und andeutungsweise $n = \pm 2$ auftreten (vergl. Abb. 6.4). Für $E_{\perp} < 0,3 \text{ eV}$ entsprechen die äußeren Maxima den Bragg-Maxima $n = \pm 1$, welche sich mit fallendem E_{\perp} zu größeren θ verschieben, genau wie es Gl. (2.62) vorgibt. Wäre θ_{rb} noch kleiner, dann wären nur die Beugungsordnungen $n = 0$ zu beobachten. Dies ist der allgemeine Fall bei dicht gepackten Me-

taloberflächen wie in Abschn. 6.1 bereits erläutert wurde. Würde das He-Ni(110)-Potential tatsächlich dem Potential eines He-Atoms vor einer Anordnung ungestörter freier Ni-Atome gleichen, so wie es in der verwendeten Näherung angenommen wird, dann wäre der Regenbogenwinkel θ_{rb} deutlich größer (rote Kurve in Abb. 6.7b) und es würden bei $E_{\perp} = 0,3 \text{ eV}$ intensive Beugungslinien bis zur Ordnung $n = 7$ auftreten. Dieses Beispiel zeigt, wie entscheidend bei Metalloberflächen der glättende Einfluss des Elektronengases auf die Korrugation des Wechselwirkungspotentials sein kann [75, 415]. Die Superposition von Paarpotentialen ist daher für Metalloberflächen bei geringen Energien nicht adäquat. Die Vernachlässigung des Beitrags des Elektronengases ist wahrscheinlich der Grund für die ca. achtfache Überschätzung der Korrugation Δz im Vergleich zu den experimentellen Ergebnissen (Abschn. 6.2.3).

Zusammenfassung: Die Regenbogenwinkel bei der Streuung von He-Atomen an Ni(110) können mit dem HF-Potential beschrieben werden. Im Bereich $E_{\perp} < 3 \text{ eV}$ ist die Superposition von Paarpotentialen keine gute Näherung.

6.2.5.2 Ne-Ni(110)

In Abb. 6.9 sind die Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von Ne-Atomen an Ni(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung und einer $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} dargestellt. Die Regenbogenwinkel sind unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} und damit von der Projektilenergie E_0 . Im Gegensatz zur Streuung von He-Atomen, wo bereits bei $E_{\perp} = 0,3 \text{ eV}$ der Regenbogenwinkel $\theta_{rb} < 5^{\circ}$ ist (Abb. 6.7b), ist θ_{rb} bei Streuung von Ne-Atomen bei gleicher Senkrechtenergie noch größer als 20° . Das Ne-Ni(110)-Potential ist also für geringe Energien V wesentlich stärker korrigiert als das He-Ni(110)-Potential. Das ist der Grund, warum bei der Streuung thermischer Ne-Atome komplexere Beugungsmuster beobachtet werden als bei der Streuung thermischer He-Atome [73]. Im Gegensatz zur Beugung schneller He-Atome treten bei Ne aufgrund des größeren Regenbogenwinkels zwar viele intensive Ordnungen auf, der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ ist jedoch zu gering, als dass diskrete Bragg-Reflexe auflöst werden könnten. Es wurden aber bei $E_{\perp} \approx 0,2 \text{ eV}$ neben den Regenbogenmaxima zusätzliche Maxima beobachtet, die man als überzähligen Regenbogen $m = 1$ interpretieren kann (hier nicht gezeigt).

Zum Vergleich sind in Abb. 6.9 die theoretischen Positionen der Regenbogenwinkel aus der klassischen Simulation basierend auf dem

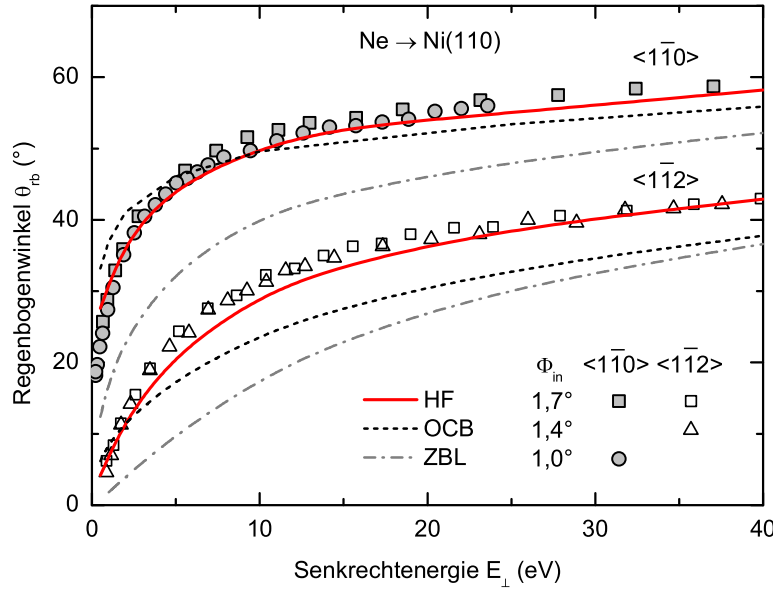


Abb. 6.9: Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von Ne-Atomen an Ni(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - (graue Symbole) und einer $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung (offene Symbole) unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} im Vergleich mit den Ergebnissen der klassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des Ne-Ni-HF-Potentials (rote Kurve), des ZBL-Potentials (Strich-Punkt-Kurve) und des OCB-Potentials (gestrichelte Kurve).

OCB-, ZBL- und HF-Potential von Gärtner [54, 55] eingezeichnet. Diese Potentiale werden in Abb. 6.8b miteinander verglichen. Das OCB-Potential stellt in diesem Fall eine gute Näherung für das individuell berechnete Ne-Ni-HF-Potential dar, während das ZBL-Potential wieder deutlich stärker ist. Die berechneten Punkte des HF-Potentials können im dargestellten Energiebereich durch Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 6.2 approximiert werden (rote Kurve in Abb. 6.8b). Mit dem ZBL-Potential wird θ_{rb} deutlich unterschätzt (Strich-Punkt-Kurve in Abb. 6.9). Das OCB-Potential kann die Regenbogenwinkel besser beschreiben, zeigt aber Abweichungen für $\langle 1\bar{1}2 \rangle$. Mit dem HF-Potential werden sowohl die $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - als auch die $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung korrekt beschrieben. Dieses Potential kann auch die von Grundmann entlang der $\langle 001 \rangle$ -Richtung gemessenen Regenbogenwinkel gut wiedergeben (siehe Abb. 4.9 in Ref. [446]). Im Unterschied zum OCB-Potential, welches in der logarithmischen Darstellung Abb. 6.8b einen geraden Verlauf hat, zeigt das HF-Potential eine geschwungene Form. Dies stammt von der Schalenstruktur der Atome, die im Thomas-Fermi-Modell, auf dem das OCB-Potential basiert (Abschn. 2.1.1), nicht berücksichtigt wird. Dadurch erklärt sich die bessere Beschreibung mit dem HF-Potential gegenüber dem OCB-Potential.

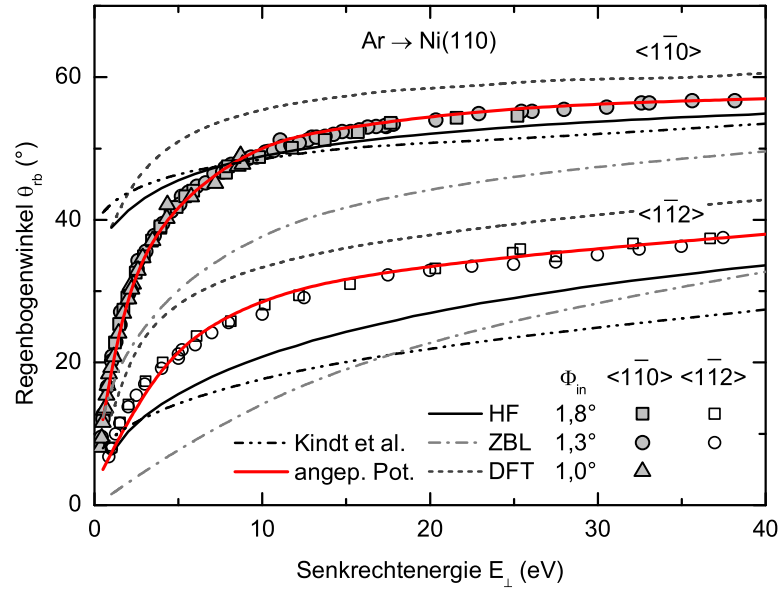


Abb. 6.10: Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von Ar-Atomen an Ni(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (graue Symbole) und einer $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung (offene Symbole) unter verschiedenen Einfallswinkeln Φ_{in} im Vergleich mit den Ergebnissen der klassischen Trajektorien-Simulation auf Basis des Ar-Ni-HF-Potentials von Gärtner [54, 55] (schwarze Kurve), des DFT-Paarpotentials von Tiwald (gestrichelte Kurve), des Morse-Potentials von Kindt *et al.* [453, 454] (Punkt-Punkt-Strich-Kurve), des ZBL-Potentials (Strich-Punkt-Kurve) und des angepassten Ar-Ni-Potentials aus Abb. 6.11 (rote Kurve).

Zusammenfassung: Die Regenbogenwinkel bei der Streuung von Ne-Atomen an Ni(110) können mit dem HF-Potential gut beschrieben werden. Für kleinere Senkrechtenergien sind die Regenbogenwinkel größer als bei der Streuung von He-Atomen. Dies erklärt, warum bei der Streuung thermischer Ne-Atome an Ni(110) [73] komplexere Beugungsmuster beobachtet werden als bei der Streuung thermischer He-Atome.

6.2.5.3 Ar-Ni(110)

In Abb. 6.10 sind die Regenbogenwinkel θ_{rb} für Streuung von Ar-Atomen an Ni(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (graue Symbole) und einer $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung (offene Symbole) als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} dargestellt. Man beachte dabei die Unabhängigkeit vom Einfallswinkel Φ_{in} und damit auch hier von der Projektilenergie E_0 . Die in Abb. 6.11 dargestellten Ar-Ni-Potentiale wurden mittels klassischer Trajektorien-Simulation daraufhin überprüft, ob sie die gemessenen Regenbogenwinkel reproduzieren können.

Karolewski [455] hat ein Ar-Ni-Potential mittels DFT für Energien

$V > 5,3 \text{ eV}$ berechnet (grüne Dreiecke in Abb. 6.11). Da aber für eine Trajektorien-Simulation das Potential bis hin zu $V = 0$ gegeben sein muss, wurde von Tiwald und Lemell [64] das Potential zwischen einem Ar- und einem Ni-Atom mittels DFT im gesamten Abstandsbereich von $r = 0,3 \text{ \AA}$ bis hin zu $r = 5 \text{ \AA}$ wo $V \approx 0$ neu berechnet (gelbe Quadrate in Abb. 6.11). Dieses DFT-Paarpotential stimmt mit dem von Karolewski gut überein. Die Trajektorien-Simulationen auf Basis der Superposition der DFT-Paarpotentiale kann zwar den Verlauf von θ_{rb} für beide untersuchten Richtungen gut beschreiben, die experimentellen Werte werden aber systematisch überschätzt (gestrichelte Kurve in Abb. 6.10). Die Äquipotentialflächen sind zu stark korrigiert, das Potential scheint also zu schwach zu sein.

Das Ar-Ni-HF-Potential (offene Kreise in Abb. 6.11) ist deutlich stärker als das DFT-Potential. Es kann im dargestellten Energiebereich analytisch durch Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 6.2 genähert werden (rote Kurve in Abb. 6.11). Im Gegensatz zum DFT-Potential werden die Regenbogenwinkel von den Simulationen auf Basis des HF-Potentials unterschätzt, wobei sie im Bereich $E_{\perp} < 5 \text{ eV}$ für $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ wiederum zu groß wiedergegeben werden. Das Ar-Ni(110)-Potential ist also für große Abstände z zu stark und für kleine Abstände zu schwach korrigiert.

Chirita *et al.* haben die Streuung von Ar an Ni(001) mittels Molekulardynamik (MD) studiert [456] und dafür ein Ar-Ni-Paarpotential in Lennard-Jones-Form $V(r) = 4D((\alpha/r)^{12} - (\alpha/r)^6)$ verwendet. Die Parameter ergeben sich dabei lediglich aus den Parametern eines Ni-Ni- und eines Ar-Ar-Potentials über eine Mittelung zu $D = 8,257 \times 10^{-2} \text{ eV}$ und $\alpha = 2,822 \text{ \AA}$. Dieses Potential (Punkt-Punkt-Strich-Kurve in Abb. 6.11) hat zwar im in Ref. [456] relevanten Energiebereich von $V = 0,1 \text{ eV}$ bis 2 eV die gleiche Größe wie das HF- bzw. das DFT-Potential, zeigt aber einen abweichenden asymptotischen Verlauf. Dieses Potential kann die Regenbögen nicht beschreiben.

Kindt *et al.* [453] haben mit einer Trajektorien-Simulation die Parameter eines Morse-Potentials angepasst, bis sie den experimentellen Streuverteilungen und Energieverlust-Messungen für Streuung von Ar an Ni(115) und Ni(111) entsprachen. Dabei wurde unter der Randbedingung optimiert, dass das resultierende Potential die experimentell bestimmte Bindungsenergie eines Ar-Atoms auf einer Ni-Oberfläche von ca. 30 meV wiedergibt. Die Parameter des besten angepassten Morse-Potentials $V(r) = D \{1 - \exp(-\alpha(r - r_0))\}^2$ sind $D = 5,286 \times 10^{-3} \text{ eV}$, $\alpha = 1,9 \text{ \AA}^{-1}$ und $r_0 = 3,9 \text{ \AA}$ [453, 454]. Dieses empirische Ar-Ni-Potential (magenta gestrichelte Kurve in Abb. 6.11) erwies sich als akkurater als das Chirita-Potential [454]. Es stimmt im Bereich $V < 1 \text{ eV}$ sehr

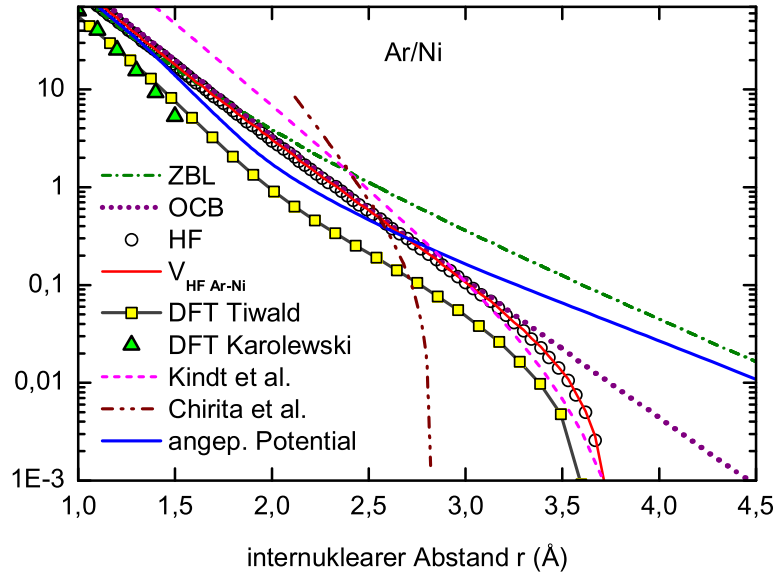


Abb. 6.11: Interatomare Potentiale für Ar-Ni: ZBL-Potential [57] (grüne Strich-Punkt-Kurve), OCB-Potential [49] (gepunktete Kurve), HF-Potential von Gärtner [54, 55] (offene Kreise) mit Anpassung einer analytischen Funktion V_{HF} nach Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 6.2 (rote Kurve), DFT-Paar-Potentiale von Karolewski [455] (grüne Dreiecke) und Tiwald [64] (gelbe Quadrate), Morse-Potential von Kindt *et al.* [453, 454], Lennard-Jones-Potential von Chirita *et al.* [456].

gut mit dem DFT- bzw. dem HF-Potential überein. Im Bereich $V > 1 \text{ eV}$ ist es jedoch stärker. Dies hat zur Folge, dass zwar die Regenbögen in $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung in ähnlicher Weise beschrieben werden wie mit dem HF-Potential, in $\langle 1\bar{1}2 \rangle$ -Richtung diese aber noch deutlicher unterschätzt werden (Punkt-Punkt-Strich-Kurve in Abb. 6.10). Auch dieses Ar-Ni(110)-Potential ist also für große Abstände z zu stark und für kleine Abstände zu schwach korrigiert.

Um die Korrugation bei großen Abständen zu schwächen und bei kleinen zu erhöhen, kann man das Ar-Ni-Potential anpassen. Für große Abstände muss es eher dem ZBL-Potential (Strich-Punkt-Kurve in Abb. 6.10) entsprechen, sodass θ_{rb} für $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ bei $E_{\perp} < 5 \text{ eV}$ kleiner wird als die Kurve für das HF- oder das DFT-Potential (vergl. Abb. 6.11). Für kleine Abstände muss es einem Mittel aus HF- und DFT-Potential entsprechen, da die gemessenen Regenbogenwinkel für beide Richtungen jeweils zwischen den entsprechenden theoretischen θ_{rb} -Kurven liegen. Dieser Überlegung folgend wurde ein Potential gewählt, welches durch acht Stützstellen definiert ist, zwischen denen exponentiell interpoliert wird. Dieses wurde mit einer Optimierungsprozedur variiert, bis die simulierten Regenbogenwinkel mit den gemessenen überein-

stimmten (rote Kurve in Abb. 6.10). Das so angepasste Potential ist in Abb. 6.11 als blaue Kurve dargestellt. Dieses angepasste Potential kann auch die von Grundmann entlang der $\langle 001 \rangle$ -Richtung gemessenen Regenbogenwinkel gut wiedergeben (siehe Abb. 4.15 in Ref. [446]).

Bei der Beschreibung der Regenbogen-Strukturen bei Streuung von He-Atomen an Fe(001) haben Danailov *et al.* [105, 160] das Potential in ähnlicher Weise empirisch angepasst. Diese Autoren haben ein sogenanntes „gemischtes Potential“ aus dem HF-Potential für $V > 4$ eV und dem stärkeren ZBL-Potential für $V < 4$ eV zusammengesetzt. Dabei hat der langreichweitige Teil des ZBL-Potentials in der Simulation den gleichen Effekt wie das in Abschn. 4.2.2 eingeführte Einbettungspotential, welches eine Folge der Wechselwirkung des Projektilatoms mit dem Elektronengas der Metalloberfläche ist. Weil bei der Superposition von Paarpotentialen der Beitrag des Elektronengases der Metalloberfläche nicht berücksichtigt wird, muss dieser bei der Anpassung der Paarpotentiale kompensiert werden. Daher haben das angepasste Potential in Abb. 6.11 und das angepasste „gemischte Potential“ aus Ref. [105, 160] einen langreichweitigen Ausläufer. Die Berücksichtigung eines Einbettungspotentials erbrachte für Ar-Ni(110) eine Verbesserung der Übereinstimmung bei Verwendung des HF-Potentials insbesondere bei $E_{\perp} < 5$ eV, ohne die gute Übereinstimmung für Ne-Ni(110) zu verringern [446].

Bisher wurde noch kein Ar-Ni(110)-Potential mittels DFT berechnet, welches den Beitrag des Elektronengases korrekt berücksichtigt. Dies stellt eine wesentlich größere Herausforderung dar, als die Berechnung des Potentials eines Ar-Atoms vor einer Al-Oberfläche [64]. Es ist jedoch zu erwarten, dass sich genauso wie bei Ar-Al(110) und Ar-Al(111) auch das Ar-Ni(110)-DFT-Potential vom Potential aus der Superposition von DFT-Paar-Potentialen unterscheiden wird (vergl. Abb. 4.12).

Zusammenfassung: Eine Superposition von HF- oder DFT-Paarpotentialen kann die Regenbogenwinkel für Streuung von Ar-Atomen an Ni(110) nicht ausreichend genau beschreiben. Mit einem angepasstem Ar-Ni-Potential ergibt sich eine gute Übereinstimmung. Ein Ar-Ni(110)-DFT-Potential wäre notwendig, um den Einfluss des Elektronengases der Metalloberfläche richtig zu berücksichtigen.

Kapitel 7

Beugung an Adsorbat-Überstrukturen

Wie in den vorangegangenen Kapiteln gezeigt wurde, ist die Beugung von schnellen Atomen zur Untersuchung sauberer Isolator- [24, 26] und Metalloberflächen [29, 30] anwendbar. Khemliche *et al.* konnten auch an Halbleiteroberflächen Beugungsmuster bei streifender Streuung schneller He-Atome beobachten [36, 37]. Um die Grenzen der Methode weiter auszutesten, wurde untersucht, ob sie sich auch zur Analyse der Überstrukturen adsorbatbedeckter Oberflächen eignet.

Die Standardmethode zur Analyse solcher Überstrukturen ist neben STM die Beugung langsamer Elektronen (LEED) [8, 9]. In Ref. [12, 457] finden sich Zusammenstellungen der mit LEED untersuchten Überstrukturen. Jedoch ist LEED bei Strukturen, die durch elektronenstimulierte Desorption [458, 459], Dissoziation [459, 460] oder Restrukturierung [461–463] verändert werden, nicht problemlos anwendbar. Adsorbat-Strukturen einer Lage H_2O - bzw. D_2O -Moleküle auf $\text{Ru}(0001)$ reagieren z.B. so empfindlich auf Bestrahlung mit Elektronen, dass bereits eine Dosis von einem Elektron pro Molekül 50% der Struktur zerstören [459]. Bei der Untersuchung der Struktur von H_2O auf $\text{NaCl}(001)$ bildet sich während des LEED-Experiments aus einer Adsorbatschicht mit (1×1) -Symmetrie eine $c(4 \times 2)$ -Überstruktur [461, 462]. Diese elektronenstrahlinduzierte Restrukturierung ist die Ursache der widersprüchlichen Ergebnisse aus LEED-Untersuchungen und aus der Beugung thermischer He-Atome (HAS).

LEED-Untersuchungen an Isolator-Oberflächen sind auch wegen der elektrischen Aufladung keinesfalls trivial [13, 268, 462]. Bei der Beugung von Atomen ist dies aufgrund der Neutralität der Projektile kein Problem. Eine Übersicht der mit HAS bereits untersuchten Adsorbat-Überstrukturen auf Metallen und Nichtmetallen findet sich bei Farias

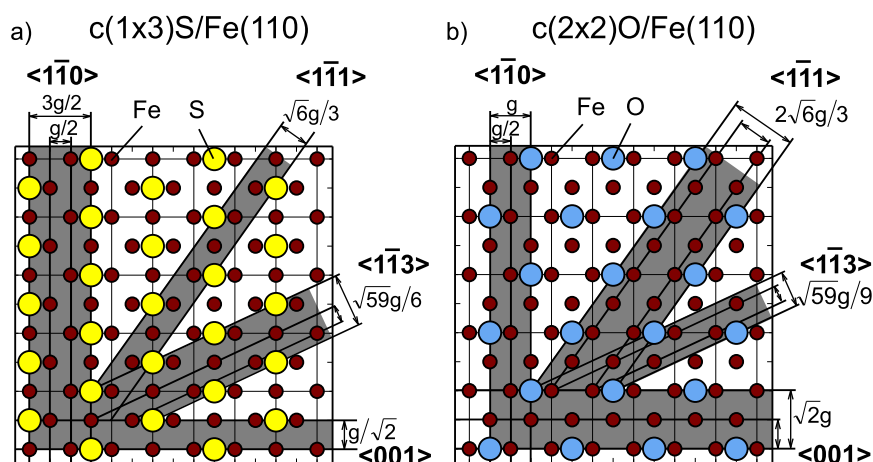


Abb. 7.1: Skizze der Strukturmodelle für die a) $c(1 \times 3)\text{S}$ - und b) $c(2 \times 2)\text{O}$ -Überstruktur auf $\text{Fe}(110)$. Vier niedrig indizierte Gitterführungskanäle sind grau markiert. Die Breite der Kanäle sind als Vielfaches der Gitterkonstante g des Fe-Kristalls angegeben. Gelbe Kreise in a): die S-Atome, blaue Kreise in b): O-Atome, kleine rotbraune Kreise: Fe-Atome der obersten Lage der $\text{Fe}(110)$ -Oberfläche.

und Rieder [20]. HAS-Experimente sind jedoch sehr aufwendig. Die geringe Effizienz bei der Detektion von Projektilen im meV-Bereich erfordert lange Messzeiten. Die oft nötigen Kühlung des Targets zur Reduktion des Debye-Waller-Faktors Gl. (2.41) kann auch zu Problemen durch Adsorption von Atomen oder Molekülen aus dem Restgas führen [20, 186].

Die Beugung schneller Atome hat hingegen eine hohe Detektionseffizienz, ist zerstörungsfrei, auf die oberste Atomlage empfindlich, bei Zimmertemperatur und höheren Temperaturen anwendbar und kann wegen der Verwendung neutraler Projektilen auch problemlos bei Isolatoren eingesetzt werden. Daher könnte diese Methode dort zur Anwendung kommen, wo die etablierten Methoden versagen. Denkbar wäre z.B. die Untersuchung von Adsorbat-Überstrukturen auf Isolatoren oder von geordneten Strukturen organischer Moleküle auf Oberflächen [38, 39], welche sehr sensibel auf Bestrahlung mit Elektronen reagieren. Um die Anwendbarkeit der Methode zu demonstrieren, wurden zunächst zwei verschiedene bekannte Adsorbat-Überstrukturen mit Beugung schneller Atome untersucht. In Abschn. 7.2 folgt ein Beispiel für eine noch unbekannte Überstruktur.

Die Experimente wurden in Zusammenarbeit mit Dr. Marco Busch durchgeführt, die Auswertung der Daten hat Jan Seifert unterstützt.

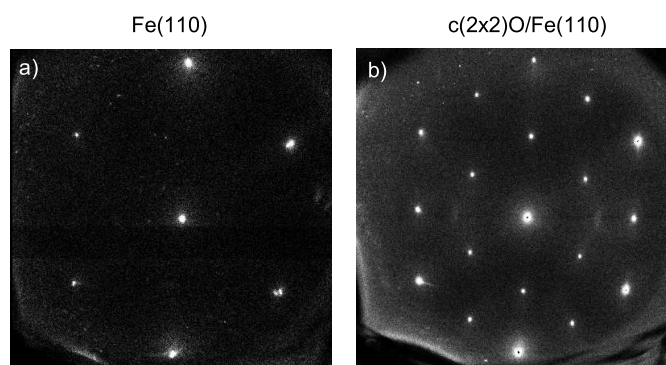


Abb. 7.2: LEED-Muster a) der sauberen $\text{Fe}(110)$ -Oberfläche nach der Präparation und b) nach der Erzeugung einer $c(2\times 2)\text{O}$ -Überstruktur mittels Dosierung von 2 L O_2 -Gas, jeweils bei 91 eV Elektronenenergie.

7.1 $c(1\times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ und $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$

7.1.1 Struktur und Präparation

Der Fe-Kristall hat ein kubisch raumzentriertes Gitter (bcc) mit einer Gitterkonstanten von $2,867 \text{ \AA}$ [464–466]. Die Struktur der Atome der obersten Ebene der $\text{Fe}(110)$ -Fläche ist in Abb. 7.1 mit rotbraunen Kreisen skizziert. Zwei verschiedene bei Zimmertemperatur stabile Adsorbat-Überstrukturen wurden auf dieser Oberfläche präpariert, die $c(1\times 3)\text{S}/$ und die $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ -Überstruktur. Diese wurden bereits experimentell [464, 467–477] und theoretisch [466, 478–482] studiert. In Abb. 7.1 sind die S- bzw. O-Atom-Positionen mit gelben bzw. blauen Kreisen skizziert. In beiden Fällen besetzen die Adsorbat-Atome die hoch-koordinierte Position zwischen den Fe-Atomen der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - und der $\langle 001 \rangle$ -Atomkette. Die $c(1\times 3)\text{S}$ -Überstruktur bildet sich bei einer Bedeckung mit $1/3 \text{ ML}$ Schwefel und die $c(2\times 2)\text{O}$ -Überstruktur bei einer Bedeckung mit $1/4 \text{ ML}$ Sauerstoff. Der senkrechte Abstand h der Adsorbat-Atome zur obersten Fe-Atomlage wurde mittels DFT-Rechnungen für S zu $h = 1,39 \text{ \AA}$ [480] und für O zu $h = 1,0 \text{ \AA}$ bestimmt [481]. Der Wert für $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ wird in Abschn. 7.1.5 mit dem Ergebnis aus der Analyse der Daten der Beugung schneller Atome verglichen.

Die $\text{Fe}(110)$ -Oberfläche wurde durch Zyklen streifenden Sputterns mit 25 keV Ar^+ -Ionen und anschließendem Ausheilen bei $T \approx 470^\circ\text{C}$ für ca. 15 Minuten präpariert. Die Reinheit und Ordnung der Oberfläche wurde mittels AES bzw. LEED kontrolliert. Die Präparation der Oberfläche hängt kritisch von der Ausheiltemperatur ab. Wählt man die Temperatur nur einige 10°C niedriger, dann ergeben sich keine scharfen LEED-Muster. Wählt man sie jedoch zu hoch, dann kommt es zur Se-

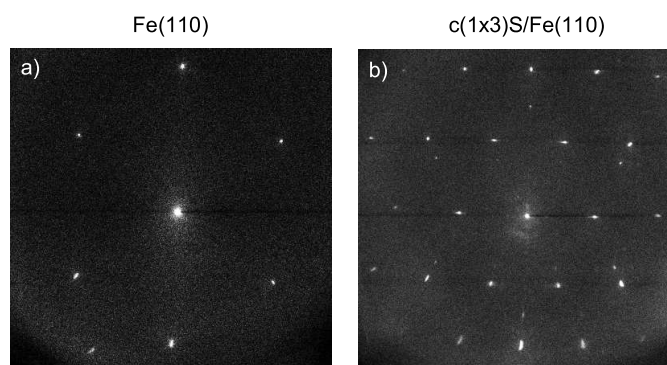


Abb. 7.3: LEED-Muster a) der sauberen Fe(110)-Oberfläche nach der Präparation und b) nach der Erzeugung einer $c(1 \times 3)$ S-Überstruktur mittels Segregation von S-Fremdatomen aus dem Fe-Kristall, jeweils bei 130 eV Elektronenenergie.

gregation von S-Fremdatomen aus dem Festkörper. In Abb. 7.2a wird das LEED-Muster der sauberen Fe(110)-Fläche nach der Präparation gezeigt. Nach dem Einlassen von 2 L reinem O_2 -Gas¹ in die UHV-Kammer bei einem Druck von 5×10^{-9} mbar bei Raumtemperatur [477] und anschließendem Ausheilen bei ca. 470°C für ca. 10 Minuten zeigten sich wohl definierte LEED-Muster², so wie in Abb. 7.2b, mit den für eine $c(2 \times 2)$ -Struktur charakteristischen zusätzlichen Maxima. Sie stimmen mit den LEED-Mustern aus Ref. [470] und Ref. [476] überein.

Schwefel-Überstrukturen können auf Fe(110) über die Zersetzung von H_2S bei hohen Oberflächen-Temperaturen erzeugt werden [467, 469]. Eine weitere Möglichkeit ist, die Segregation von S-Fremdatomen aus dem Fe-Kristall bei hohen Temperaturen auszunutzen [467, 468, 483, 484]. Da sich bereits bei den Versuchen zur Präparation einer sauberen Fe(110)-Oberfläche bei zu hoher Ausheiltemperatur eine bekannte S-Überstruktur zeigte, waren Experimente mit H_2S -Gas nicht notwendig. Ausgehend von der sauberen Fe(110)-Fläche (Abb. 7.3a) wurde das Target wiederholt für einige Minuten auf $T = 730^\circ\text{C}$ erhitzt und nach dem Abkühlen auf $T \approx 100^\circ\text{C}$ die Veränderung des LEED-Musters beobachtet. Für die Erzeugung einer $c(1 \times 3)$ S-Überstruktur erwiesen sich drei Präparationsschritte mit jeweils 15 Minuten Ausheilen als optimal. Es zeigte sich ein LEED-Muster so wie in Abb. 7.3b. Es gleicht den $c(1 \times 3)$ S-LEED-Mustern aus Ref. [467] und [469]. Die von Weissenrieder *et al.* [468] beobachtete $c(3 \times 1)$ S-Überstruktur, welche ebenfalls durch thermisch induzierte Segregation von S-Fremdatomen erzeugt wurde, war nicht zu beobachten. Ein LEED-Bild wird in Ref. [468] jedoch nicht gezeigt.

¹ 1 L = 1 Langmuir = $1,33 \times 10^{-6}$ mbar s

² Erst nach dem Ausheilen zeigten sich auch bei He-Streuung scharfe Beugungslinien.

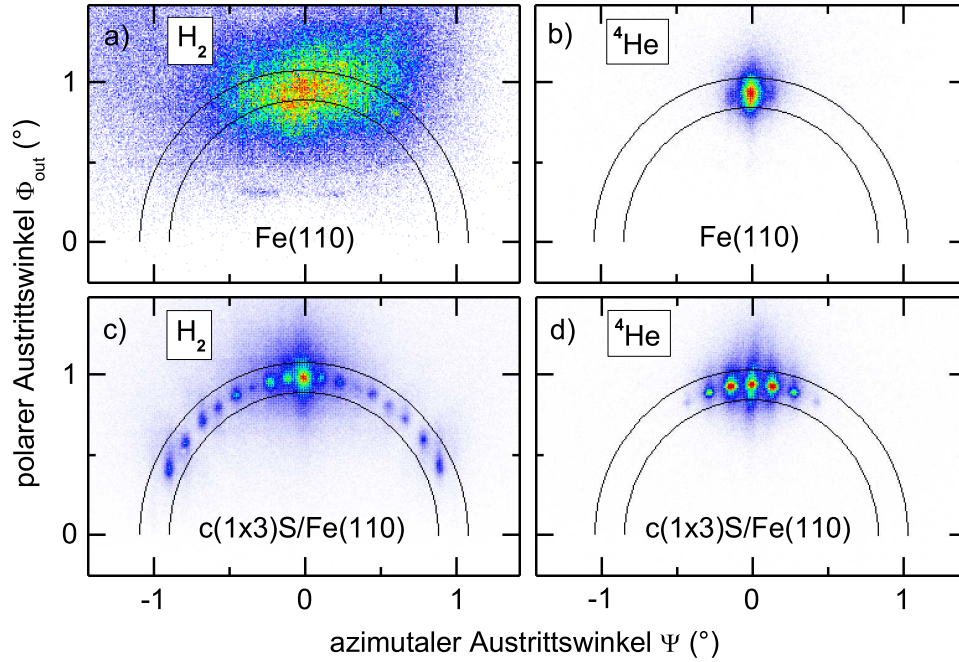


Abb. 7.4: Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Intensitätsverteilungen der sauberen Fe(110)-Oberfläche nach der Präparation (oben) und nach dem Aufbringen einer c(1×3)S-Überstruktur (unten) bei Streuung von H₂-Molekülen (links) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung und ⁴He-Atomen (rechts) entlang einer $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung mit $E_0 = 0,6$ keV unter $\Phi_{in} = 0,97^\circ$. Die Halbkreise markieren den Kreisring elastisch gestreuter Projektile (vergl. Abb. 2.2).

Die chemische Reinheit der c(1×3)S/Fe(110)-Überstruktur wurde mittels Auger-Elektronen-Spektroskopie überprüft. Das Verhältnis der Auger-Maxima (peak-to-peak) betrug $S(152\text{ eV})/Fe(651\text{ eV}) = 0,24$ bei einer primären Elektronenenergie von 3 keV. Dies stimmt mit den Beobachtungen in Ref. [467] überein³.

Die Erzeugung der Adsorbat-Überstrukturen kann auch mit Beugung schneller Atome beobachtet werden. In Abb. 7.4a ist die Intensitätsverteilung bei Streuung von H₂-Molekülen entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung der reinen Fe(110)-Fläche abgebildet. Es zeigt sich eine klassische Streuverteilung. Nach der Ausbildung einer c(1×3)S/Fe(110)-Überstruktur ändert sich die Intensitätsverteilung in ein Beugungsmuster wie in Abb. 7.4c, mit Bragg-Reflexen entlang des Kreisrings für elastisch gestreute Projektile (vergl. Abb. 2.2). Bei Streuung von He-Atomen erscheint im Gegensatz zu H₂-Molekülen auch an der reinen Fe(110)-Fläche bereits ein Beugungsmaximum nullter Ordnung wie

³Man beachte die Vertauschung mit dem Reziproken bei den Angaben der Auger-Verhältnisse in Ref. [467].

in Abb. 7.4b, welches durch seine geringe azimutale Breite als solches eindeutig zu erkennen ist. Jedoch zeigen die Beugungsmaxima höherer Ordnungen keine Intensität, lediglich $n = 1$ ist andeutungsweise zu erkennen. Auch bei der Beugung thermischer Atome an dicht gepackten Metalloberflächen zeigen sich generell keine intensiven Maxima höherer Ordnungen [408]. Die Korrugation der Äquipotentialflächen ist zu gering, da hier die quasifreien Elektronen des Metalls die Korrugation glätten [75, 415] (siehe Abschn. 6.1). Erhöht man die Korrugation, durch das Aufbringen der $c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ -Überstruktur, dann werden Projektile auch in größere Ablenkwinkel gestreut. Daher erscheinen dann auch intensive Bragg-Reflexe höherer Ordnungen, so wie in Abb. 7.4d gezeigt. Dies entspricht den Beobachtungen beim ersten experimentellen Nachweis von Beugungseffekten bei Streuung thermischer Atome an Metalloberflächen [410, 411]. Auch dort wurde an der unbedeckten Metalloberfläche nur ein einziges Beugungsmaximum beobachtet, während nach Bedeckung mit einer Überstruktur mehrere Ordnungen zu beobachten waren. Für die Streuung thermischer Atome an unbedecktem $\text{Ni}(111)$ ist die Korrugation auch verschwindend gering aber nach Erzeugung einer $(2 \times 2)\text{O}$ - oder einer $(2 \times 2)\text{H}$ -Überstruktur groß genug, um die Intensität auf mehrere Beugungsordnungen zu verteilen [485].

7.1.2 Winkelposition der Beugungslinien

Um zu demonstrieren, dass es sich bei den Maxima in Abb. 7.4d um Bragg-Reflexe handelt, wurden die Beugungsmuster bei Streuung von ^3He - und ^4He -Atomen unter sonst gleichen Bedingungen verglichen. In Abb. 7.5a wird die projizierte Intensität bei gleicher Projektilenergie $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ und in Abb. 7.5b bei gleicher De-Broglie-Wellenlänge für Streuung von ^3He - und ^4He -Atomen an $c(1 \times 3)\text{S}$ entlang einer $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung verglichen. Die rote Kurve in Abb. 7.5b ist die auf die Abszissenachse Ψ projizierte Intensität aus Abb. 7.4d. Die schwarzen Kurven in Abb. 7.5a und 7.5b sind identisch. Obwohl die beiden Isotope bei gleicher Energie den gleichen klassischen Trajektorien folgen, unterscheiden sich die Verteilungen für ^3He und ^4He in Abb. 7.5a. Dies ist nur im Rahmen der Interferenz von Materiewellen erklärbar. Der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ ist bei Streuung von ^4He -Atomen geringer als bei ^3He , so wie es die Bragg-Bedingung Gl. (5.1) verlangt. ^3He und ^4He haben die gleiche De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} , wenn das Produkt ME_0 in Gl. (2.33) gleich ist, d.h. wenn $E_0(^4\text{He})/E_0(^3\text{He}) = 3/4$. Dies ist z.B. für $0,6 \text{ keV } ^4\text{He}$ und $0,8 \text{ keV } ^3\text{He}$ der Fall. Daher überlagern sich die Positionen der Bragg-Maxima in Abb. 7.5b. Die unterschiedliche relative Intensität der Maxima wird in Abschn. 7.1.3 diskutiert.

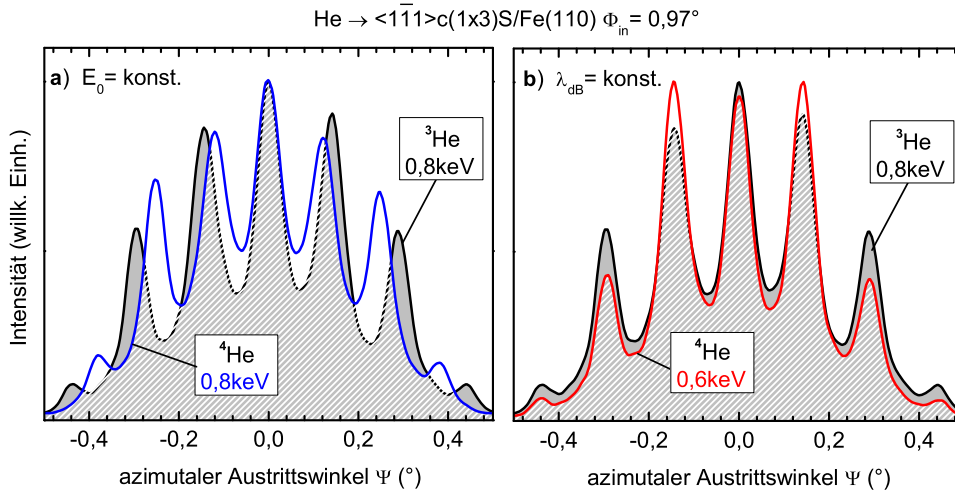


Abb. 7.5: Vergleich der Position der Bragg-Reflexe als Funktion des azimuthalen Austrittswinkels Ψ zwischen ^3He und ^4He bei a) gleicher Projektilenergie $E_0 = 0,8 \text{ keV}$ und b) gleicher De-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}} = 0,0058 \text{ \AA}$ für Streuung an c(1x3)S/Fe(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 0,97^\circ$. Die schwarzen Kurven für 0,8 keV ^3He in a) und b) sind identisch.

Nun hängt der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ nach Gl. (5.2) aber auch von der Breite des Gitterführungskanal d ab, sodass sich, je nachdem an welcher Überstruktur die Projektile gestreut werden, $\Delta\Psi$ unterscheiden sollte. In Abb. 7.6 werden links die Beugungsmuster bei Streuung von ^3He -Atomen an c(1x3)S/Fe(110) und c(2x2)O/Fe(110) für verschiedene Gitterführungsrichtungen bei jeweils gleicher Energie E_0 gezeigt, so wie sie mit dem MCP-Detektor aufgenommen wurden. Da $\Delta\Psi$ unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} ist (Abb. 5.5), kann die Position der Bragg-Maxima in den auf die Achse des azimuthalen Austrittswinkels Ψ projizierten Intensitätsverteilungen auch bei unterschiedlichem Φ_{in} direkt miteinander verglichen werden. Auf der rechten Seite in Abb. 7.6 sind die Projektionen der Beugungsmuster beider Überstrukturen für jeweils den gleichen Gitterführungskanal gegenübergestellt. Der Abstand benachbarter Bragg-Maxima unterscheidet sich für beide Überstrukturen in jedem untersuchten Kanal. Für Streuung entlang der $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ - und der $\langle 001 \rangle$ -Richtung ist der Beugungslinienabstand bei c(2x2)O (schwarze Kurve) nur halb so groß wie bei c(1x3)S (rote Kurve). Die Position des Bragg-Maximums der Ordnung $n = 2$ bei c(2x2)O stimmt mit der Position der Ordnung $n = 1$ bei Streuung an c(1x3)S überein. Im Gegensatz dazu ist der Beugungslinienabstand bei Streuung entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung bei c(2x2)O um 50% größer als bei c(1x3)S, sodass die Position der Maxima der dritten Ordnung von c(1x3)S und die Position der Maxima der zweiten Ordnung von

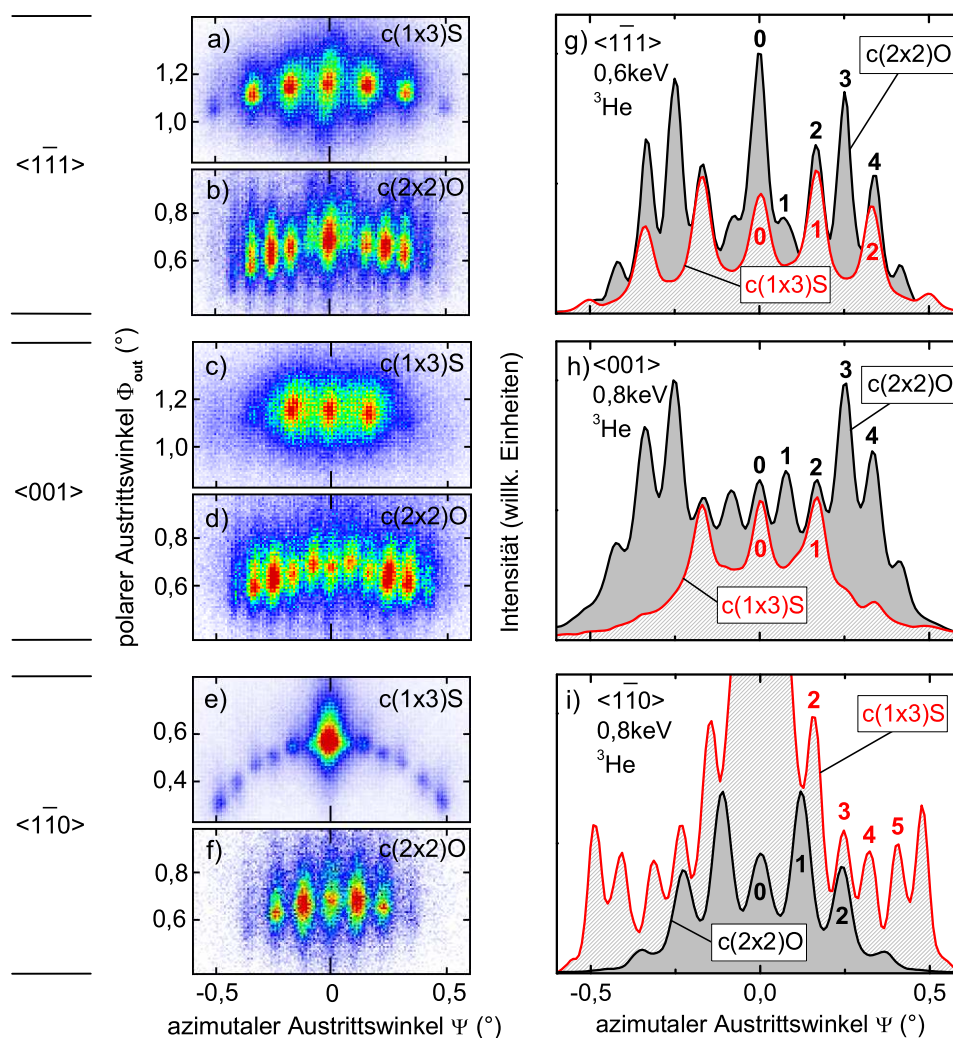


Abb. 7.6: Links: Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Intensitätsverteilungen bei Streuung von ^3He -Atomen an $c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ (a, c, e) und $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ (b, d, f) mit $E_0 = 0,6 \text{ keV}$ (a, b) und $0,8 \text{ keV}$ (c bis f) entlang $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ - (oben), $\langle 001 \rangle$ - (Mitte) und $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (unten) unter Einfallswinkeln $0,6^\circ < \Phi_{\text{in}} < 1,2^\circ$. Blau = niedrige, rot = hohe Intensität. Rechts: Vergleich der Projektionen der Intensitäten aus a) bis f) auf die Achse des azimuthalen Austrittswinkels Ψ für $c(1 \times 3)\text{S}$ (rot) und $c(2 \times 2)\text{O}$ (schwarz) jeweils für g) $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -, h) $\langle 001 \rangle$ - und i) $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Die Nummern bezeichnen die jeweilige Beugungsordnung n einiger Maxima.

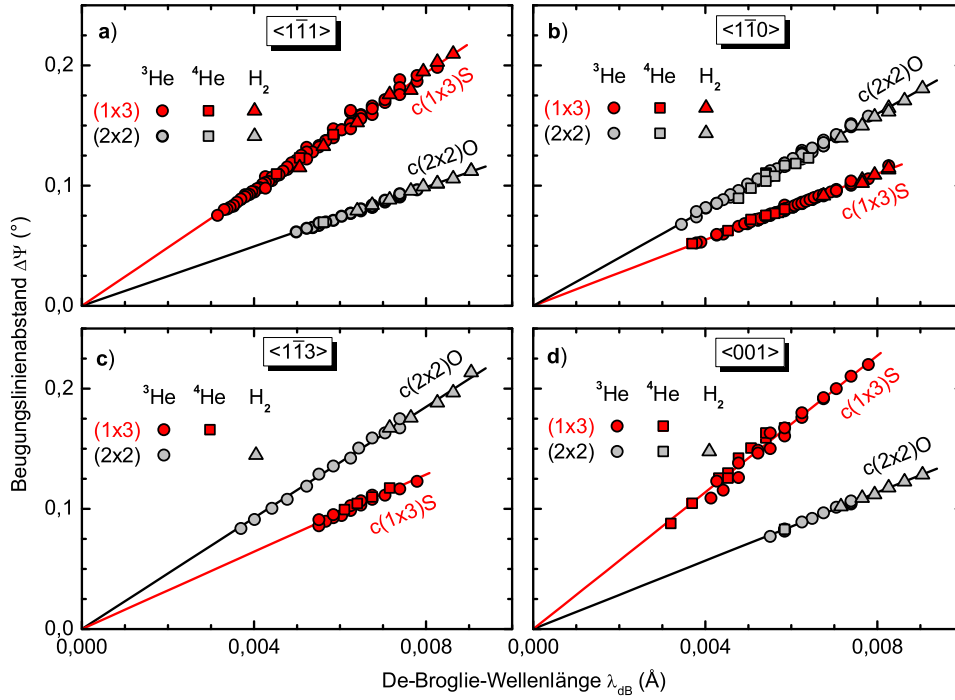


Abb. 7.7: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} für ^3He -Atome (Kreise), ^4He -Atome (Quadrate) und H_2 -Moleküle (Dreiecke) bei Streuung an c(1x3)S/Fe(110) (rote Symbole) und c(2x2)O/Fe(110) (graue Symbole) entlang a) $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -, b) $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -, c) $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ - und d) $\langle 001 \rangle$ -Richtung. Die Geraden repräsentieren die beste Anpassung einer linearen Funktion an die Datenpunkte.

c(2x2)O übereinstimmen.

Diese Abstandsverhältnisse sind unabhängig von der Energie und der Projektilsorte bzw. dem Isotop. In Abb. 7.7 werden die aus den Beugungsmustern bei Streuung von ^3He - und ^4He -Atomen sowie H_2 -Molekülen mit verschiedenen Energien bestimmten mittleren Beugungslinienabstände $\Delta\Psi$ beider Überstrukturen als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} verglichen. Der Anstieg der angepassten linearen Funktionen (mit der Nebenbedingung, den Koordinatenursprung zu schneiden) in Abb. 7.7a und 7.7d ist für c(1x3)S (rot) doppelt so groß wie für c(2x2)O (grau). Demgegenüber beträgt er in Abb. 7.7b und 7.7c nur 2/3 des Anstiegs für c(2x2)O. Der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ hängt also von der jeweiligen Überstruktur ab.

In Abb. 7.8 werden die Beugungslinienabstände der vier untersuchten Gitterführungsrichtungen der jeweils gleichen Überstruktur miteinander verglichen. Während bei c(1x3)S in Abb. 7.8a $\Delta\Psi$ für die $\langle 001 \rangle$ - und $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung relativ groß ist, diese Gitterführungs Kanäle also relativ schmal sind, ist es bei c(2x2)O in Abb. 7.8b genau umgekehrt.

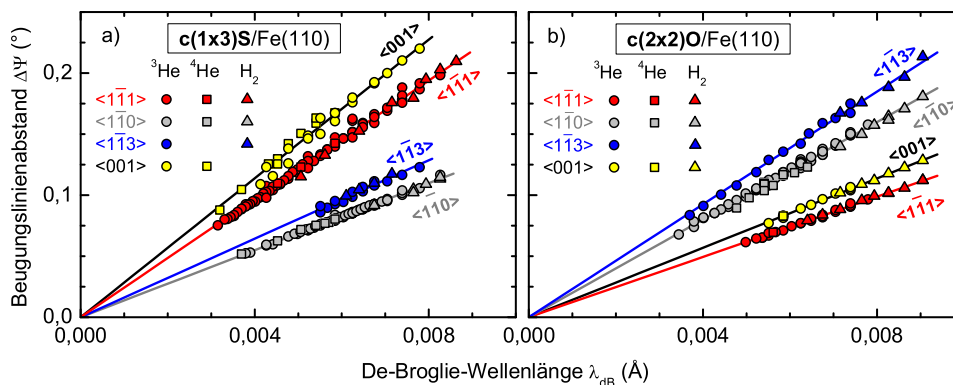


Abb. 7.8: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} für die Streuung von ^3He - (Kreise) und ^4He -Atomen (Quadrate) sowie H_2 -Molekülen (Dreiecke) an a) $c(1\times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ und b) $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang $\langle 001 \rangle$ - (gelbe Symbole), $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ - (rote Symbole), $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ - (blaue Symbole) und $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (graue Symbole). Die Linien repräsentieren die beste Anpassung einer linearen Funktion an die Datenpunkte.

Tab. 7.1: Anstieg s der Regressionsgeraden aus Abb. 7.8 für Streuung an $c(1\times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ und $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -, $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ -, $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ - und $\langle 001 \rangle$ -Richtung, Breite d_{exp} des entsprechenden Gitterführungskanals, so wie sie sich aus s ergibt, und die zugehörige theoretische Breite d_{cal} nach dem jeweiligen Strukturmodell (Abb. 7.1). In der letzten Spalte ist das Verhältnis der experimentell bestimmten Breiten d_{exp} der Überstrukturen zur jeweiligen theoretischen Breite des entsprechenden Gitterführungskanals der reinen $\text{Fe}(110)$ -Oberfläche d_{Fe} angegeben.

		s ($^\circ/\text{\AA}$)	d_{exp} (\AA)	d_{cal} (\AA)	$d_{\text{exp}}/d_{\text{Fe}}$
$c(1\times 3)\text{S}$	$\langle 1\bar{1}0 \rangle$	$13,7 \pm 0,4$	$4,2 \pm 0,1$	$3g/2=4,29$	$2,9 \pm 0,1$
	$\langle 1\bar{1}3 \rangle$	$16,1 \pm 0,5$	$3,6 \pm 0,1$	$\sqrt{59}g/6=3,66$	$2,9 \pm 0,1$
	$\langle 1\bar{1}1 \rangle$	$24,2 \pm 0,7$	$2,36 \pm 0,07$	$\sqrt{6}g/3=2,34$	$1,01 \pm 0,03$
	$\langle 001 \rangle$	$28,4 \pm 0,8$	$2,02 \pm 0,06$	$g/\sqrt{2}=2,02$	$1,00 \pm 0,03$
$c(2\times 2)\text{O}$	$\langle 1\bar{1}0 \rangle$	$20,0 \pm 0,6$	$2,87 \pm 0,09$	$g=2,86$	$2,00 \pm 0,06$
	$\langle 1\bar{1}3 \rangle$	$23,1 \pm 0,7$	$2,48 \pm 0,08$	$\sqrt{59}g/9=2,44$	$2,03 \pm 0,06$
	$\langle 1\bar{1}1 \rangle$	$12,3 \pm 0,4$	$4,6 \pm 0,1$	$2\sqrt{6}g/3=4,67$	$1,99 \pm 0,06$
	$\langle 001 \rangle$	$14,2 \pm 0,4$	$4,0 \pm 0,1$	$\sqrt{2}g=4,05$	$1,99 \pm 0,06$

Das entspricht den Strukturmodellen aus Abb. 7.1. Nach Gl. (5.2) ergibt sich die Breite des Gitterführungskanals d direkt aus dem Anstieg s der linearen Anpassung zu $d = 180^\circ/s\pi$. Die Ergebnisse für die vier untersuchten Richtungen der beiden Überstrukturen werden in Tab. 7.1 mit den theoretischen Werten verglichen. Die Unsicherheit, die sich aus der statistischen Streuung der Datenpunkte um die jeweilige Regressionsgerade ergibt, ist gegenüber der systematischen Unsicherheit aus der azimuthalen Eichung des MCP-Detektors (Abschn. 3.1.3.3) vernachlässigbar. In der letzten Spalte ist das Verhältnis der aus dem Anstieg s experimentell bestimmten Breite des jeweiligen Gitterführungskanals zur theoretischen Breite bei einer reinen, unbedeckten Fe(110)-Oberfläche angegeben. Unter der Annahme, dass die Überstrukturen nur aus einer einzigen Atomlage bestehen, lässt sich aus diesen Werten eindeutig auf eine c(1×3)- bzw. c(2×2)-Überstruktur schließen.

Zusammenfassung: Aus dem Abstand der Beugungslinien bei der Beugung schneller Atome an Adsorbat-Überstrukturen lassen sich die Breiten der Gitterführungskanäle bestimmen, aus denen auf die laterale Anordnung der Adsorbat-Atome geschlossen werden kann.

7.1.3 Intensität der Beugungsmaxima

Das zweite wichtige Merkmal der Beugungsmuster ist die Abhängigkeit der relativen Intensität der Bragg-Reflexe von der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB\perp}$. Als Beispiel werden in Abb. 7.9 die projizierten Intensitäten für die Streuung von ^3He -Atomen an c(2×2)O/Fe(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung mit unterschiedlichen Energien E_0 bei konstantem Einfallswinkel Φ_{in} gezeigt. Zusätzlich zur bereits besprochenen Änderung der Position der Bragg-Maxima ist eine Änderung deren relativer Intensität mit E_0 zu erkennen. Während bei $E_0 = 0,45 \text{ keV}$ in a) die Beugungsordnung $n = 0$ sehr schwach und $n = \pm 1$ intensiv ist, haben diese Reflexe bei $E_0 = 0,75 \text{ keV}$ in c) ähnliche Intensität. Der Trend setzt sich fort, bis in e) bei einer Energie von $E_0 = 1,00 \text{ keV}$ die Intensität bei $n = \pm 1$ verschwunden und bei $n = 0$ relativ hoch ist.

Bei der Streuung entlang einer $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ -Richtung in Abb. 7.10 ist es umgekehrt. Hier ist zu beobachten, wie die relative Intensität für $n = 0$ verschwindet, während sie bei $n = \pm 1$ mit E_0 steigt. Diese Modulation der Intensität kann innerhalb der semiklassischen Theorie als Interferenz zwischen klassischen Trajektorien interpretiert werden (siehe Abschn. 2.3.4.2). Während die Interferenz der Trajektorien, welche von symmetrisch äquivalenten Positionen der Oberfläche gestreut werden, die Winkelposition θ_n der Bragg-Reflexe bestimmt (A und A^* in

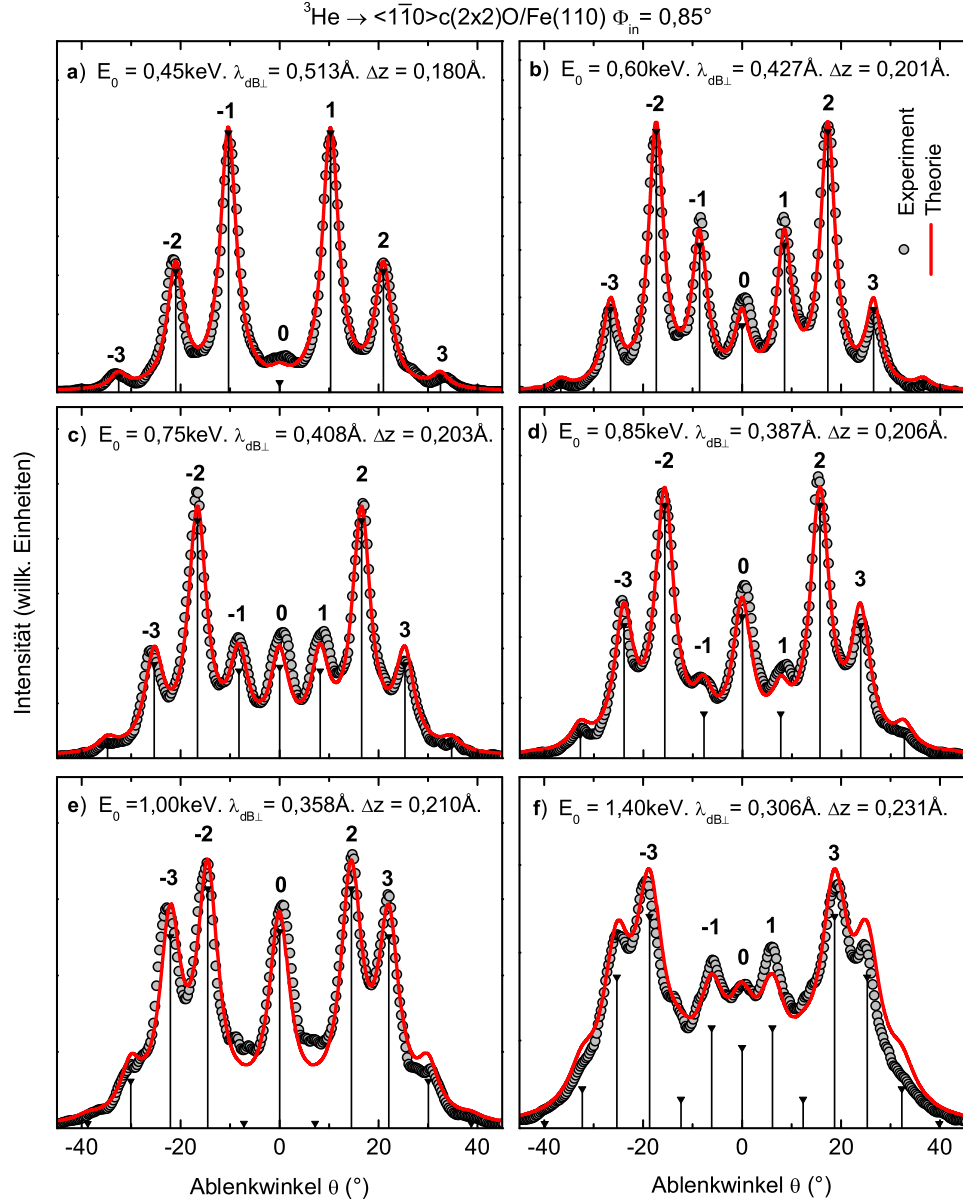


Abb. 7.9: Graue Kreise: Intensität als Funktion des Ablenkwinkels θ für Streuung von ^3He -Atomen an $\text{c}(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ mit a) $E_0 = 0,45 \text{ keV}$, b) $0,60 \text{ keV}$, c) $0,75 \text{ keV}$, d) $0,85 \text{ keV}$, e) $1,00 \text{ keV}$ und f) $1,40 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0,85^\circ$ entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Rote Kurven: Überlagerung von Lorentz-Kurven nach Gl. (5.8) wobei die schwarzen Balken sowohl die Position θ_n (Bragg-Bedingung Gl. (2.62)) als auch die Höhe des Maximums nach Gl. (2.76) jeder beitragenden Lorentz-Kurve kenntlich machen. Die ermittelte beste Anpassung der Korrugation Δz ist in jedem Feld angegeben. Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n .

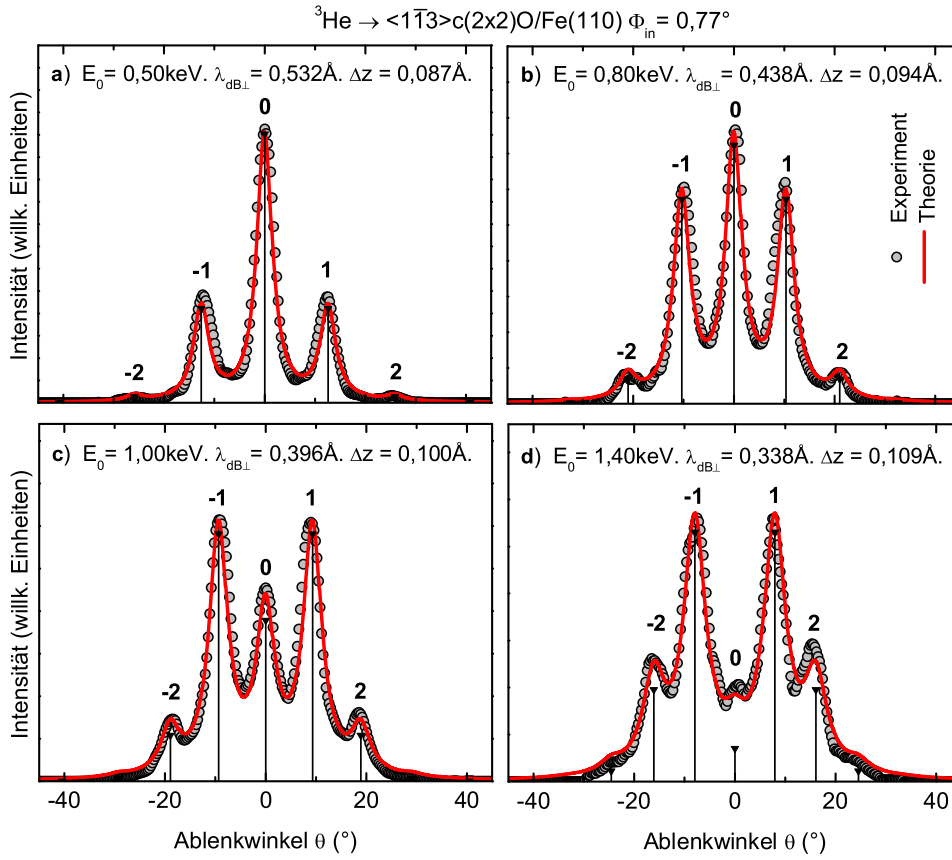


Abb. 7.10: Wie Abb. 7.9, jedoch für Streuung entlang einer $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ -Richtung mit a) $E_0 = 0,50 \text{ keV}$, b) $0,80 \text{ keV}$, c) $1,00 \text{ keV}$ und d) $1,40 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0,77^\circ$.

Abb. 2.21), resultiert die Intensität dieser Reflexe aus der Interferenz zwischen den beiden unterschiedlichen Trajektorien mit gleichem Ablenkungswinkel θ_n (A und B in Abb. 2.21). Aus der Analyse der Intensität der Bragg-Reflexe kann man auf die Korrugation des Wechselwirkungspotentials schließen.

In Abb. 7.11a ist die Intensität der Bragg-Reflexe $n = 0$ und $n = 1$ bei Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{c}(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung als Funktion der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ dargestellt. Die Intensität einer bestimmten Ordnung n ist definiert als die Fläche A_n der korrespondierenden Lorentz-Kurve einer freien Anpassung einer Superposition von Lorentz-Kurven nach Gl. (5.6) an alle auftretenden Maxima der normierten projizierten Beugungsmuster. Auf diese Weise wird die gesamte Intensität den Beugungsordnungen zugeordnet, sodass $\sum A_n = 1$. Die Werte können direkt mit der theoretischen Intensitäten nach Gl. (2.76) verglichen werden. Die Kurven in Abb. 7.11a repräsentieren die beste korrelierte Anpassung der relativen

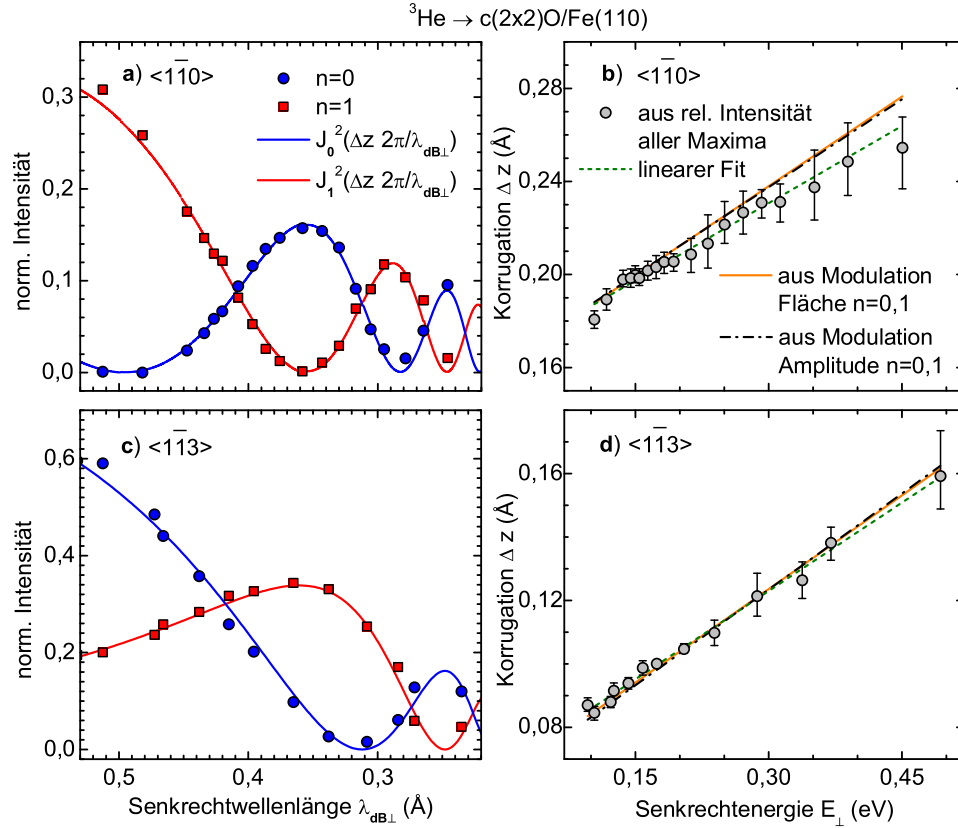
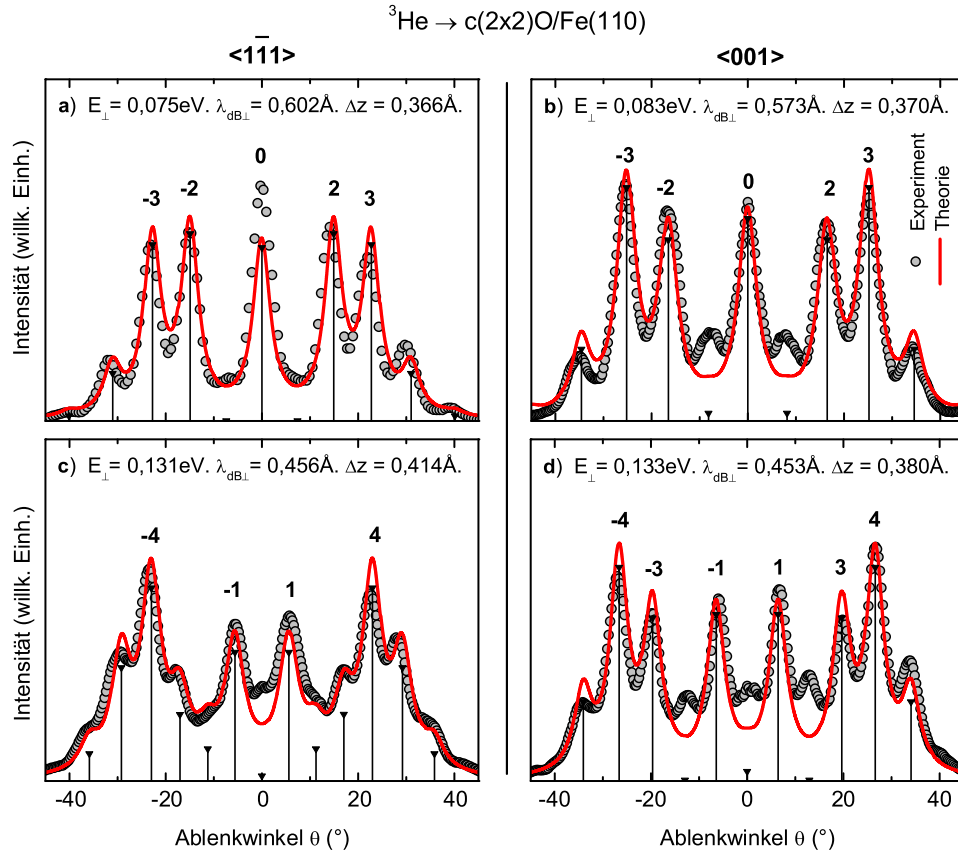


Abb. 7.11: **a)** Relative Intensität der Beugungsordnung $n=0$ (blaue Kreise) und $n=1$ (rote Quadrate) definiert als Fläche der jeweiligen Lorentz-Kurve aus der besten freien Anpassung nach Gl. (5.6) an die gemessenen Intensitätsverteilungen für die Streuung von ${}^3\text{He}$ an $\text{c}(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(001)$ entlang $\langle 110 \rangle$ als Funktion der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$. Die blaue und die rote Kurve repräsentieren die beste korrelierte Anpassung von J_n^2 nach Gl. (2.78) für $n=0$ und $n=1$ unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit $\Delta z(E_{\perp})$. **b)** Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ so wie sie sich aus der in a) gezeigten Anpassung ergibt (orange Gerade) und als Ergebnis der Anpassung an die Amplituden der Bragg-Reflexe $n=0$ und $n=1$ [31] (schwarze Punkt-Strich-Kurve), sowie Ergebnisse der besten Anpassung von Gl. (5.8) an alle auftretenden Beugungsmaxima (graue Kreise), wie z.B. in Abb. 7.9 und 7.10 als rote Kurven gezeigt. Die gestrichelte grüne Gerade ist die beste Anpassung einer linearen Funktion an die Kreise. **c)** wie a) und **d)** wie b) jedoch für die $\langle 113 \rangle$ -Richtung.

Intensität von $n=0$ und $n=1$ in Harte-Wand-Näherung mit J_n^2 nach Gl. (2.78) unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit der Korrugation Δz von der Senkrechterenergie E_\perp . Die ermittelte Funktion mit der besten Anpassung $\Delta z/\text{\AA} = 0,161 + 0,257E_\perp/\text{eV}$ wird in Abb. 7.11b als durchgezogene orange Gerade gezeigt. Wird nur die Modulation der Amplitude der Bragg-Maxima ausgewertet und mit J_n^2 unter Zuhilfenahme einer „Dämpfungsfunktion“ angepasst [31], dann ergibt sich fast die gleiche Funktion (Strich-Punkt-Kurve). Die grauen Kreise in Abb. 7.11b sind das Ergebnis der besten Anpassung einer Superposition von Lorentz-Kurven an alle auftretenden Beugungsmaxima eines jeden Beugungsmusters nach Gl. (5.8). Die roten Kurven in Abb. 7.9 repräsentieren jeweils solch eine beste Anpassung. Der angepasste Wert für Δz ist jeweils angegeben. Die schwarzen Balken markieren sowohl die Positionen θ_n nach Gl. (2.62) als auch die Höhe der Maxima der Lorentz-Kurven nach Gl. (2.76). Die in Abb. 7.11b dargestellten Fehlerbalken repräsentieren den Wert, um den Δz geändert werden muss, um die quadratische Abweichung σ^2 zu verdoppeln (siehe Abb. 5.25). Die gestrichelte grüne Gerade ist die beste Anpassung einer linearen Funktion an die damit gewichteten Datenpunkte. Diese Funktion weicht mit $\Delta z/\text{\AA} = 0,164 + 0,221E_\perp/\text{eV}$ nur geringfügig vom Ergebnis der Analyse der Modulation der Intensität von $n=0$ und $n=1$ ab. Die Annahme einer linearen Funktion für $\Delta z(E_\perp)$ ist also eine gute Näherung im relevanten Energiebereich.

Die gleichen Analysen wurden für den $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ -Gitterführungs kanal der c(2x2)O-Überstruktur durchgeführt. Die orange durchgezogene Gerade in Abb. 7.11d ist das Ergebnis der korrelierten Anpassung der relativen Intensität von $n=0$ und $n=1$ aus Abb. 7.11c. Auch hier unterscheidet sich die ermittelte lineare Funktion kaum vom Ergebnis der Anpassung an die Amplituden der Bragg-Reflexe (Strich-Punkt-Kurve). Die roten Kurven in Abb. 7.10 sind das Ergebnis der besten Anpassung von Gl. (5.8) an die Daten. Die ermittelten Werte für Δz (graue Kreise in Abb. 7.11d) weichen kaum von der Geraden aus der Anpassung der Intensitätsmodulation ab. Die beste lineare Anpassung an die gewichteten Daten ist $\Delta z/\text{\AA} = 0,067 + 0,186E_\perp/\text{eV}$ (gestrichelte grüne Gerade). Man findet also wie beim $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Kanal eine gute Übereinstimmung zwischen den drei unterschiedlichen Methoden bei der Auswertung der relativen Intensitäten der Bragg-Reflexe.

Da bei der Streuung entlang des $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ - und des $\langle 001 \rangle$ -Kanals der Beugungslinienabstand geringer ist als bei $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ und $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ (Abb. 7.8b), waren hier die Beugungsmuster nur in einem kleineren Bereich von Senkrechterenergien E_\perp auswertbar. Die Intensität der Beugungslinien wurde mittels Gl. (5.8) angepasst. Die roten Kurven in Abb. 7.12 sind



das Ergebnis dieser Anpassung an die experimentellen Daten. Die so ermittelten Werte Δz zeigen für diese beiden Richtungen einen relativ geringen Anstieg mit der korrespondierenden Senkrechtenergie E_\perp . Die Ergebnisse werden in Abschn. 7.1.5 diskutiert.

Um alle für verschiedene Senkrecht-de-Broglie-Wellenlängen $\lambda_{\text{dB}\perp}$ gemessenen projizierten Intensitätsverteilungen in einem gemeinsamen Diagramm darstellen und mit der Theorie vergleichen zu können, wurden Beugungskarten (siehe Abschn. 2.3.5) erstellt. Abb. 7.13a zeigt zur Veranschaulichung die 3D-Darstellung der projizierten Intensitätsverteilungen für die Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{c}(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang einer $\langle \bar{1}\bar{1}0 \rangle$ -Richtung als Funktion von $\lambda_{\text{dB}\perp}$ und des Ablenk winkels θ . Dieses Diagramm wurde aus 21 Intensitätsverteilungen wie in Abb. 7.9 erstellt. In Abb. 7.13b sind in der gleichen Darstellung die drei experimentellen Intensitätsverteilungen hervorgehoben, die in

$${}^3\text{He} \rightarrow \langle 1\bar{1}0 \rangle \text{c}(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$$

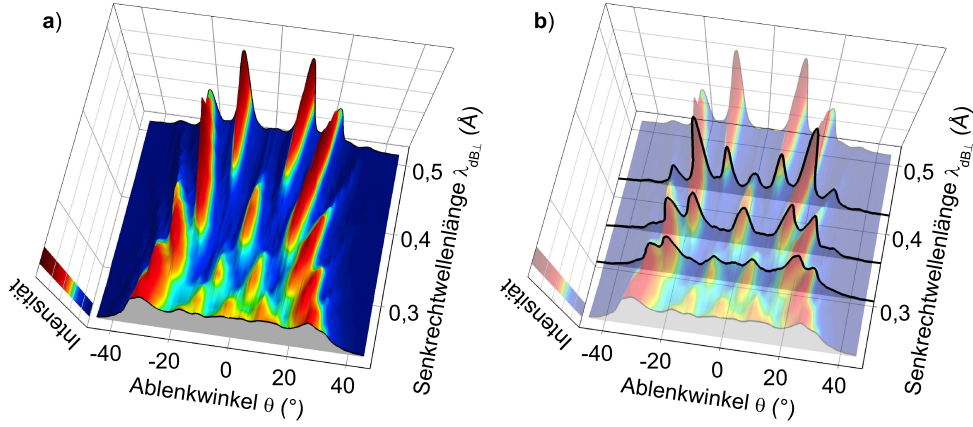


Abb. 7.13: a) Dreidimensionale Darstellung der gemessenen Intensitätsverteilungen als Funktion des Ablenkwinkel θ und der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB}\perp}$ bei Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an c(2×2)O/Fe(110) entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Die gleichen Daten werden unten in Abb. 7.14a als zweidimensionale Beugungskarte gezeigt. In b) sind zur Veranschaulichung in die gleiche Darstellung wie in a) die drei experimentellen Intensitätsverteilungen aus Abb. 7.9b, e und f als schwarze Kurve eingezeichnet.

Abb. 7.9b, e und f dargestellt sind. Da bei gegebenem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ die relativen Intensitäten und die Ablenkwinkel θ_n der Bragg-Reflexe unabhängig vom Einfallswinkel Φ_{in} sind, enthält die $(\theta, \lambda_{\text{dB}\perp})$ -Beugungskarte alle Informationen des Experiments. Sie ist ein „Fingerabdruck“ des Wechselwirkungspotentials.

In Abb. 7.14 werden die gemessenen (links) und berechneten (rechts) Beugungskarten für Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an c(2×2)O/Fe(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung (oben) und einer $\langle 1\bar{1}3 \rangle$ -Richtung (unten) verglichen. Die Normierung und die Farbkodierung sind in Abb. 7.14a und 7.14b bzw. in Abb. 7.14c und 7.14d identisch. Abb. 7.14a ist die zweidimensionale Darstellung von Abb. 7.13a. Die berechneten Beugungskarten basieren auf Gl. (5.8). Für $\Delta z(\lambda_{\text{dB}\perp})$ wurde die Korruvation aus der linearen Anpassung an die experimentellen Daten (gestrichelte grüne Geraden in Abb. 7.11b bzw. 7.11d) verwendet. Die gestrichelten grauen Kurven markieren die theoretische Position der Bragg-Reflexe der Ordnung n nach Gl. (2.62). Während die Winkelposition durch die Breite des Gitterführungschanals d gegeben ist, wird die Position der Intensitätsmaxima entlang der gestrichelten grauen

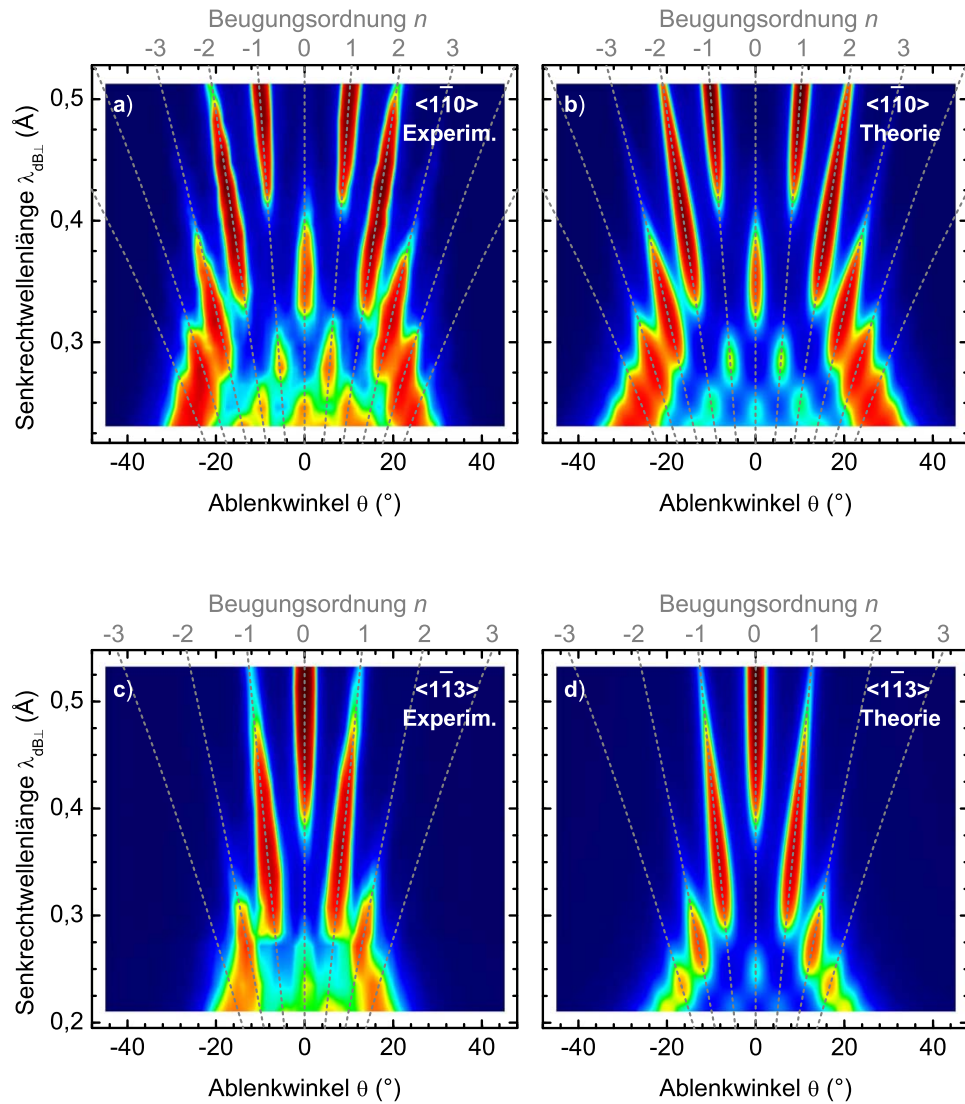
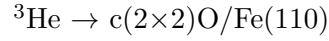


Abb. 7.14: Gemessene (links) und berechnete (rechts) Beugungskarten für Streuung von ^3He -Atomen an $\text{c}(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung (oben) und einer $\langle \bar{1}13 \rangle$ -Richtung (unten). Die gestrichelten grauen Kurven markieren die theoretische Position der Bragg-Reflexe der Ordnung n nach Gl. (2.62). Normierung und Farbkodierung sind in a) und b) bzw. in c) und d) identisch.

Kurven von der Korrugation Δz des effektiven Wechselwirkungspotentials bestimmt. Die Übereinstimmung zwischen den berechneten und den gemessenen Beugungskarten zeigt, dass das Modell einer sinusförmigen harten Wand mit der oben jeweils angegebenen linear von der Energie abhängenden Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ eine gute Näherung ist.

Eine Beschreibung der Beugungsmuster bei der Streuung an der Schwefel-Überstruktur ist mit solch einem einfachen Modell nicht möglich. Zwar ist die Modulation der relativen Intensität deutlich zu erkennen, jedoch sind die Äquipotentialflächen im relevanten Energiebereich nicht sinusförmig. Abb. 7.15 zeigt die Intensität bei Streuung von ^3He -Atomen entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung der c(1x3)S/Fe(110)-Oberfläche bei vier verschiedenen Energien E_0 . Die angepassten farbigen Gauß-Kurven sollen die jeweiligen Maxima hervorheben, um die Modulation der relativen Intensität der Bragg-Reflexe zu verdeutlichen. Während bei $E_0 = 0,70 \text{ keV}$ die Beugungsordnungen $n = 2$ und $n = 4$ nicht zu erkennen sind, ist deren Intensität bei $E_0 = 0,95 \text{ keV}$ hoch, wobei nun $n = 3$ und $n = 5$ nicht mehr auftreten. Bei $E_0 = 1,40 \text{ keV}$ ist es wieder umgekehrt. Die Intensität im zentralen Bereich um $\Psi = 0$ verschwindet jedoch nicht. Wären die Äquipotentialflächen sinusförmig, dann wäre die Intensität bei $\Psi = 0$ geringer als am Rand der Verteilung, wo sich die Regenbogenmaxima befinden (vergl. Abb. 7.6e). Ein zentrales Maximum deutet auf einen flachen Verlauf der Äquipotentialflächen zwischen den S-Atomketten der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung hin. Eine nicht-sinusförmige harte Wand kann durch eine Fourier-Reihe mit mehreren Koeffizienten parametrisiert werden, die z.B. mit der von Rieder *et al.* in Ref. [185] beschriebenen Prozedur durch Anpassung an die experimentellen Daten bestimmt werden können. Khemliche *et al.* [36] konnten auf diese Weise eine harte Wand konstruieren, die die Beugungsmuster bei Streuung schneller He-Atome an c(2x2)ZnSe(001) reproduzieren kann. Es gibt zwar keinen direkten funktionalen Zusammenhang zwischen dem tatsächlichen „weichen“ He-c(2x2)ZnSe(001)-Potential und der harten Wand, die das gleiche Beugungsmuster erzeugt, es lassen sich aber z.B. Rückschlüsse auf Verschiebungen der Elektronendichte an der Oberfläche ziehen [36, 37].

Andererseits gibt es auch Hinweise darauf, dass das zentrale Maximum von der Streuung an Bereichen der Oberfläche stammt, wo sich die c(1x3)S-Überstruktur nicht vollständig ausgebildet hat. In Abb. 7.16 sind Beugungsmuster für die Streuung von H_2 -Molekülen an c(1x3)S/Fe(110) bei azimuthaler Verdrehung γ_{in} des einfallenden Teilchen-Strahls gegen die $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Gitterführungsrichtung gezeigt. Der Kreisring markiert die theoretische Position der elastisch gestreuten Projektile (siehe Abschn. 5.1.9). Im Gegensatz zur Streuung von He-

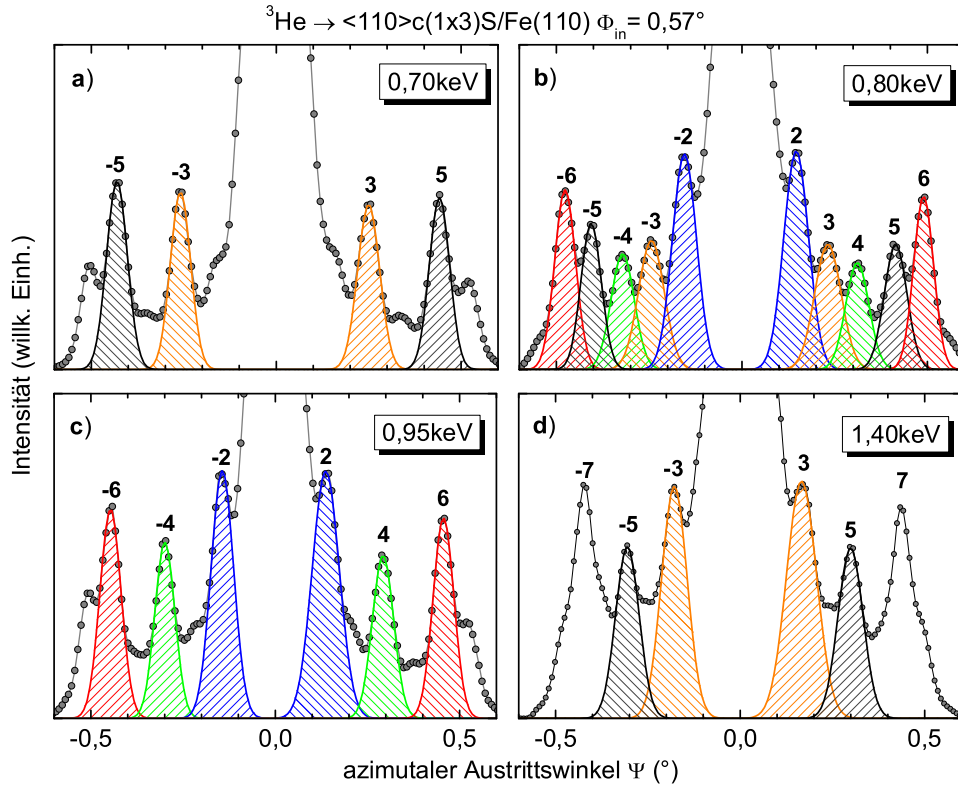


Abb. 7.15: Graue Kreise: Intensität als Funktion des azimutalen Austrittswinkels Ψ für die Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{c}(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ mit a) $E_0 = 0,70 \text{ keV}$, b) $0,80 \text{ keV}$, c) $0,95 \text{ keV}$ und d) $1,40 \text{ keV}$ unter $\Phi_{\text{in}} = 0,57^\circ$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Die Nummern bezeichnen die Beugungsordnung n . Die angepassten farbigen Gauß-Kurven sollen die jeweiligen Maxima hervorheben, um die Modulation der relativen Intensität der Bragg-Reflexe zu verdeutlichen.

Atomen an $\text{LiF}(001)$ ist hier die relative Intensität der Beugungsordnung $n = 0$ bei $\Psi = 0$ dominant, unabhängig von γ_{in} (vergl. Abb. 5.58 S. 201). Dies deutet darauf hin, dass die Intensitätsverteilung eine Überlagerung des Beugungsmusters der $\text{c}(1 \times 3)\text{S}$ -Überstruktur mit der Intensitätsverteilung bei Streuung an einer zweiten Phase ist. Die Streuung an einer zweiten Phase, die eine anders geordnete Struktur aufweist als die $\text{c}(1 \times 3)\text{S}$ -Überstruktur, entspricht der Streuung entlang einer Random-Richtung. Hier werden die Projektile unter planarer Gitterführung gestreut, wobei nur die Beugungsordnung $n = 0$ auftritt. Während sich in Abb. 7.16 das Beugungsmuster der $\text{c}(1 \times 3)\text{S}$ -Überstruktur in Abhängigkeit von γ_{in} ändert, entspricht die zugleich stattfindende Streuung an der koexistierenden zweiten Phase weiterhin der Streuung in Random-Richtung. Aus dem Verhältnis der Intensität der Ordnung $n = 0$ zur Intensität des gesamten Beugungsmusters könnte der Anteil

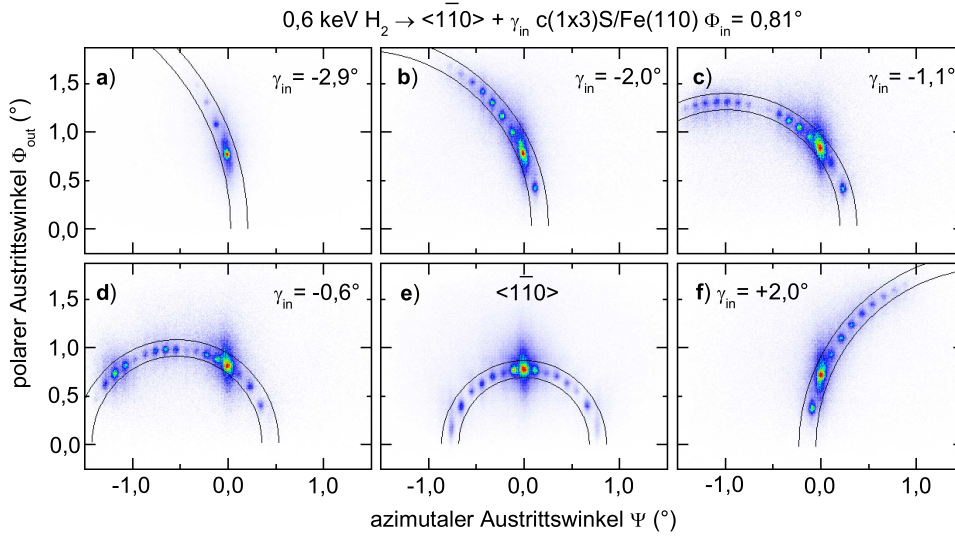


Abb. 7.16: Beugungsmuster bei azimuthaler Verdrehung γ_{in} des einfallenden Strahls gegen die $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Gitterführungsrichtung bei der Streuung von H_2 -Molekülen an c(1 × 3)S/Fe(110) mit $E_0 = 0,60$ keV unter polarem Einfallswinkel $\Phi_{in} = 0,81^\circ$ bei a) $\gamma_{in} = -2,9^\circ$, b) $-2,0^\circ$, c) $-1,1^\circ$, d) $-0,6^\circ$, e) $0^\circ \equiv \langle 1\bar{1}0 \rangle$ und f) $+2,0^\circ$. Der Kreisring zeigt die theoretische Position der elastisch gestreuten Projektile.

der Oberfläche bestimmt werden, der mit der zweiten Phase bedeckt ist. Das Auftreten von schwachen zusätzlichen Maxima im LEED-Bild Abb. 7.3b, welche nicht der c(1 × 3)-Struktur zuzuordnen sind, deuten auch auf die Koexistenz einer zweiten Phase hin. Im Weiteren wird daher nur die eindeutig dem Strukturmodell in Abb. 7.1b entsprechende Sauerstoff-Überstruktur betrachtet.

Auf einen Vergleich von Abb. 7.14 mit theoretischen Beugungskarten, die auf der Superposition von Paar-Potentialen basieren, wurde verzichtet, da diese sowohl vom verwendeten Paar-Potential als auch vom Abstand h des Adsorbat-Atoms abhängen. Eine Beschreibung der Potentiale und eine Diskussion der sich daraus ergebenden Werte h folgt in den Abschnitten 7.1.4 bzw. 7.1.5. Die Analyse der experimentellen Daten erfolgte bis hier ohne Annahmen über das Wechselwirkungspotential. Sollte es zukünftig andere Ansätze oder Theorien zur Beschreibung des He-c(2 × 2)O/Fe(110)-Potentials geben, bleiben die in Harte-Wand-Näherung abgeleiteten Ergebnisse gültig. Für einen Vergleich muss dann nur die Korrektur der Harte-Wand-Näherung bezüglich der Weichheit des Potentials – so wie in den folgenden beiden Abschnitten – abgeschätzt werden.

Zusammenfassung: Der gesamte Datensatz aus der Beugung schneller ^3He -Atome an $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ lässt sich mit dem Modell einer sinusförmigen harten Wand mit einer linear von der Senkrechterenergie abhängenden Korrugation gut beschreiben.

7.1.4 Potentiale und Korrektur der Harte-Wand-Näherung

Wie in Abschn. 2.3.7 ausführlich beschrieben muss eine gegenüber der Harte-Wand-Näherung realistischere semiklassische Behandlung die Variation der De-Broglie-Wellenlänge entlang der Trajektorie berücksichtigen. Die Projektile werden während des Streuprozesses im Potential in Abhängigkeit des Stoßparameters unterschiedlich stark abgebremst und beschleunigt. Daraus ergibt sich ein Unterschied in der Phasendifferenz $\Delta\varphi$ zwischen den jeweils zwei interferierenden Trajektorien vom Typ A und B im Vergleich zur Rechnung in Harte-Wand-Näherung $\Delta\varphi_{\text{HWN}}$. Experimentelle Daten, die in Harte-Wand-Näherung analysiert wurden, unterschätzen daher im Allgemeinen (Potential wie Abb. 2.26b) die Korrugation des tatsächlichen Projektil-Oberfläche-Potentials [70, 75, 178]. Um die Auswirkung dieses Effekts abzuschätzen, wurde die mit einer Trajektorienimulation berechnete Modulation der Intensität der Ordnung $n=0$ mit dem Ergebnis in Harte-Wand-Näherung verglichen.

Das in der Simulation verwendete He-Oberfläche-Potential wurde „paarweise additiv“ als Superposition He-Fe- und He-O-Paarpotentialen konstruiert. Es wurden sowohl die Paarpotentiale des generalisierten OCB-Potentials als auch die für He-Fe und He-O von Gärtner [54, 55] mittels HF-Theorie individuell berechneten Potentiale betrachtet. Die O-Atome der $c(2 \times 2)\text{O}$ -Überstruktur sind hauptsächlich kovalent gebunden, haben aber auch ionischen Charakter [474]. Das Wechselwirkungspotential zwischen O^- -Ion und He-Atom unterscheidet sich aber vom Potential zwischen O^0 -Atom und He-Atom. Um die resultierenden Abweichungen abzuschätzen, wurde zusätzlich das individuell berechnete He- O^- -Potential in die Auswertung mit einbezogen.

Tab. 7.2: Parameter für die analytische Funktion Gl. (2.14) zur Beschreibung der individuell berechneten He-Fe- und He-O-HF-Potentiale von Gärtner [54, 55] im in Abb. 7.17 dargestellten Energiebereich.

He-Fe	a_i	-12,16291	4,07524	15,87682	-7,22431
	b_i	1,22642	1,40111	1,13594	1,08874
He- O^0	a_i	-2,15148	-9,41497	7,88587	5,79838
	b_i	1,56348	2,25749	1,79051	3,09109
He- O^-	a_i	-7,13300	1,41520	7,50770	-0,00935
	b_i	2,58920	1,58103	2,94890	0,75204

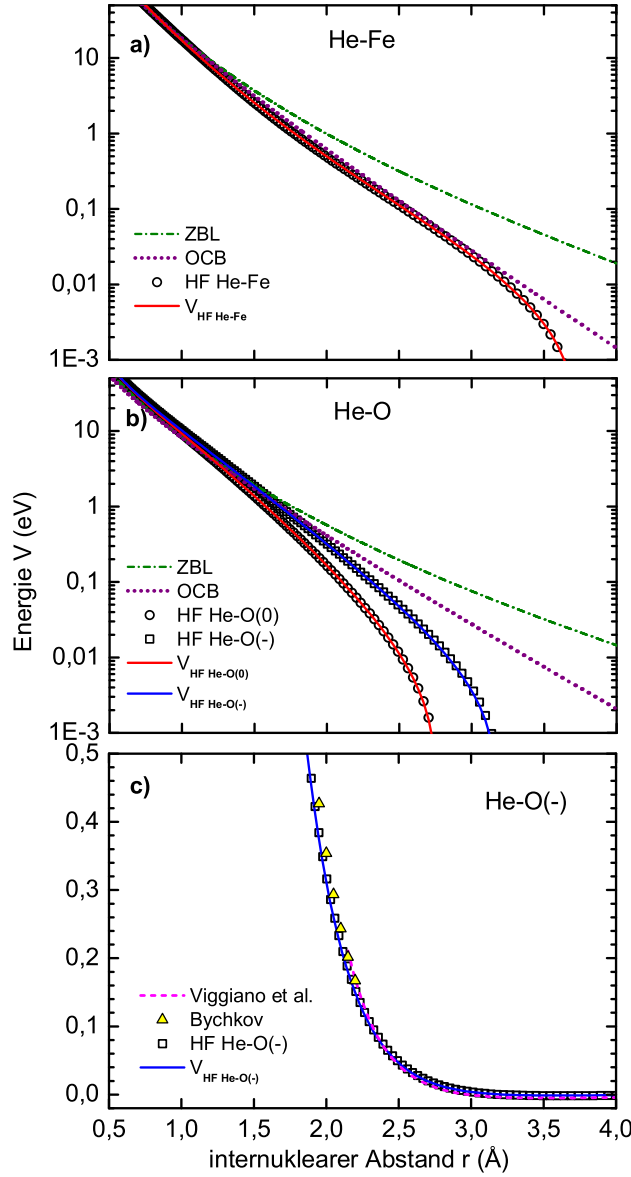


Abb. 7.17: Potentiale für a) He-Fe und b) He-O⁰ und He-O⁻ aus HF-Rechnungen von Gärtner [54, 55] im Vergleich zum ZBL- und OCB-Potential. Die durchgezogenen Kurven V_{HF} repräsentieren die Anpassung der analytischen Funktion Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 7.2 an die berechneten Punkte. c) zeigt das He-O⁻-Potential für $V < 0,5$ eV im Vergleich zu den experimentell ermittelten Potentialen von Viggiano *et al.* [486] und Bychkov angegeben in Ref. [486].

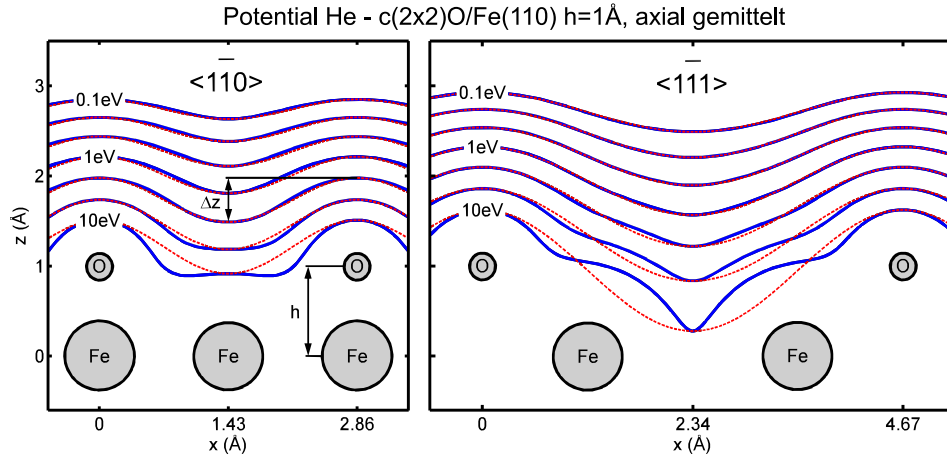


Abb. 7.18: Skizze der Anordnung der Fe- und O-Atome in der in der Projektion auf die $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Ebene (links) und die $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Ebene (rechts). Blaue Kurven: Äquipotentiallinien $V_s(x, z) = \text{konst}$ im Bereich 0,1 eV bis 10 eV des entlang der jeweiligen Richtung y gemittelten Potentials $V(x, y, z)$ zwischen He-Projektile und c(2x2)O/Fe(110) aus der Superposition von HF-Paarpotentialen (Abb. 7.17) für einen Abstand $h = 1 \text{ Å}$ des O-Atoms zur obersten Fe-Atomlage (bei $z = 0$). Zum Vergleich ist zu jeder Äquipotentiallinie eine Kosinus-Kurve mit jeweils gleicher Korrugation Δz eingezeichnet (rote gestrichelte Kurven).

In Abb. 7.17 werden die Potentiale miteinander verglichen. Während das OCB-Potential für He-Fe eine gute Näherung des individuell berechneten Potentials im relevanten Bereich $0,01 \text{ eV} < V(r) < 1 \text{ eV}$ darstellt, ist das ZBL-Potential in diesem Bereich zu repulsiv. Die durchgezogenen Kurven repräsentieren die Anpassung einer analytischen Funktion V_{HF} nach Gl. (2.14) mit den Parametern aus Tab. 7.2 an die von Gärtner berechneten Punkte des individuellen Potentials. Das HF-Potential für He-O⁻ ist, wegen der Abstoßung der Elektronen untereinander, stärker als das für He-O⁰. Das OCB-Potential ist zwar eine bessere Näherung als das ZBL-Potential, es weicht aber im relevanten Energiebereich ebenfalls vom individuell berechneten Potential ab. Abb. 7.17c zeigt das He-O⁻-HF-Potential für $V < 0,5 \text{ eV}$ im Vergleich zu den aus der Beweglichkeit von O⁻-Ionen in He-Gas experimentell abgeleiteten Potentials von Bychkov und Viggiano *et al.* aus Ref. [486]. Experiment und Theorie stimmen gut überein.

In Abb. 7.18 sind einige Äquipotentiallinien $V_s(x, z) = \text{konst}$ des entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - bzw. der $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung gemittelten Potentials zwischen He-Projektile und der c(2x2)O/Fe(110)-Oberfläche gezeigt. Dieses Potential basiert auf den neutralen He-O- und He-Fe-HF-Paarpotentialen für einen Abstand $h = 1 \text{ Å}$ des O-Atoms zur obersten Fe-Atomlage. Da die HF-Paarpotentiale die anziehenden Kräfte nicht kor-

rekt beschreiben, wurden bei der Superposition Beiträge $V(r) < 0$ nicht berücksichtigt. Die Korrugation Δz der Äquipotentiallinien steigt mit der zu $V_s(x, z)$ korrespondierenden Energie E_\perp . Um die in Abschn. 7.1.3 verwendete analytische Lösung mit Bessel-Funktionen J_n^2 zu rechtfertigen, die nur für sinusförmige Potentiale exakt ist, wurde in die Grafik zu jeder Äquipotentiallinie eine Kosinus-Kurve mit jeweils gleicher Korrugation Δz eingezeichnet. Die Äquipotentiallinien, die zu den hier relevanten kleinen Energien $E_\perp \lesssim 1$ eV korrespondieren, weichen kaum vom sinusförmigen Verlauf ab. In der Grafik ist ebenfalls die Anordnung der Fe- und O-Atome in der jeweiligen Ebene skizziert. Die Korrugation $\Delta z(V)$ ist vom Abstand h abhängig (Abb. 7.18a). Durch Variation von h kann $\Delta z(V)$ mit den experimentell ermittelten Werten $\Delta z(E_\perp)$ in Übereinstimmung gebracht und auf diese Weise der Wert h bestimmt werden. Zuvor müssen jedoch die in Harte-Wand-Näherung ermittelten Werte für Δz noch hinsichtlich der Weichheit des Potentials, wie in Abschn. 2.3.7 beschrieben, korrigiert werden.

Abb. 7.18 entspricht dem auf S. 69 in Abb. 2.26b skizzierten Fall. Es ist also ein Korrekturfaktor $f > 1$ zu erwarten. Abweichend von der in Abschn. 2.3.7 beschriebenen Vorgehensweise wurde hier nicht die Korrugation Δz der harten Wand angepasst, sondern es wurde über die Änderung des Abstands h des O-Atoms die Korrugation des „weichen“ Potentials geändert bis $\Delta\varphi(E_\perp) = \Delta\varphi_{\text{HWN}}(E_\perp)$. Aus dem ermittelten korrigierten Abstand h^* ergibt sich der Korrekturfaktor dann zu $f = \Delta z(h^*, E_\perp) / \Delta z(h, E_\perp)$. In Abb. 7.19 ist als Beispiel die Korrektur für das auf den neutralen He-Fe- und He-O⁰-HF-Potentialen basierende He-c(2x2)O/Fe(110)-Potential bei Streuung von ³He-Atomen entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung dargestellt. Die schwarzen durchgezogenen Kurven in Abb. 7.19a repräsentieren die Phasendifferenz $\Delta\varphi$ der interferierenden Trajektorien A und B der Beugungsordnung $n = 0$ als Funktion der Senkrechterenergie E_\perp aus der semiklassischen Simulation bei verschiedenen Abständen h des O-Atoms zur Fe-Oberfläche. Der Phasenunterschied ist umso größer, je größer h bzw. die Korrugation Δz des effektiven Wechselwirkungspotentials ist (vergl. Abb. 7.18a). Für einen Abstand von $h = 0,87$ Å ergibt sich die grüne gestrichelte Kurve. Wird die gleiche Simulation in Harte-Wand-Näherung durchgeführt, d.h. ohne Berücksichtigung der Variation der Wellenzahl k entlang der Trajektorie Gl. (2.93), dann ergibt sich die rote durchgezogene Kurve. Diese entspricht dem Ergebnis für einen Abstand von $h = 0,96$ Å unter Berücksichtigung der Variation der Wellenzahl $k(t)$ beim Streuprozess (blaue Strich-Punkt-Kurve).

In Abb. 7.19b ist die sich nach Gl. (2.40) aus der in Abb. 7.19a gezeigten Phasendifferenz aus der Simulation in Harte-Wand-Näherung

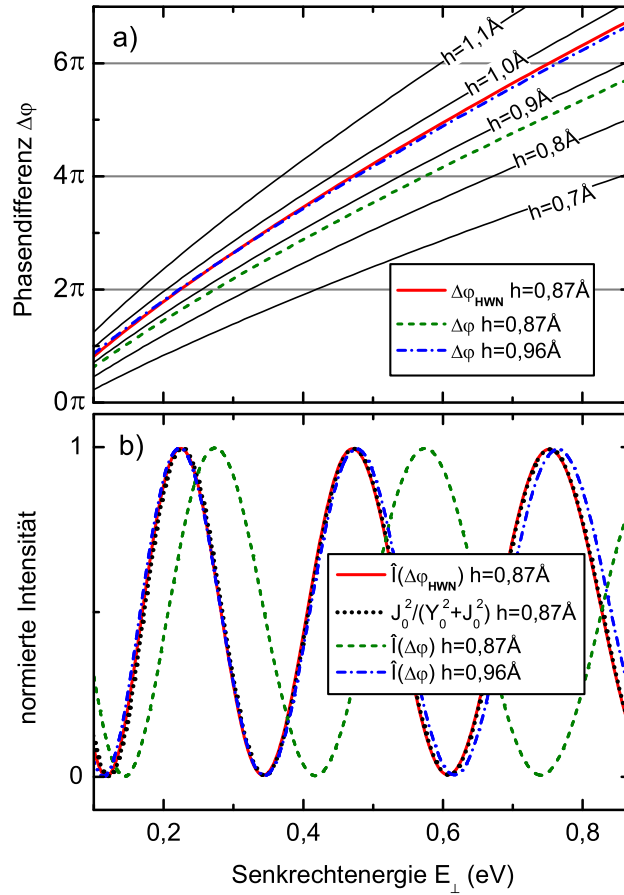


Abb. 7.19: Phasenunterschied $\Delta\varphi$ (oben) und normierte Intensität (unten) für die Beugungsordnung $n=0$ als Funktion der Senkrechtenergie E_{\perp} für Streuung von ^3He -Atomen an $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Durchgezogene schwarze Kurven: Simulation unter Verwendung der individuellen HF-Potentiale (Abb. 7.17) für verschiedene Abstände h des O-Atoms zur obersten Fe-Ebene. Rote durchgezogene / grüne gestrichelte Kurve: Ergebnis für $h=0,87\text{\AA}$ in Harte-Wand-Näherung (HWN) / mit „weichem“ Potential (WP). Blaue Punk-Strich-Kurve: Ergebnis für $h=0,96\text{\AA}$. Zum Vergleich ist in b) die normierte Intensität aus der Lösung mit Besselfunktion J_0^2 für $h=0,87\text{\AA}$ eingezeichnet (gepunktete Kurve).

$\Delta\varphi_{\text{HWN}}(E_{\perp})$ bei $h=0,87 \text{ \AA}$ ergebende normierte ($\sigma = 1/2$) Intensität \hat{I} dargestellt (rote Kurve). Zum Vergleich ist die normierte⁴ Intensität $\hat{I} = J_0^2/(Y_0^2 + J_0^2)$ der analytischen Lösung mit Bessel-Funktionen J_n^2 für $n=0$ ebenfalls für die Korrugation $\Delta z(E_{\perp})$ bei $h=0,87 \text{ \AA}$ als schwarze gepunktete Kurve eingezeichnet. Die Simulation in Harte-Wand-Näherung unterscheidet sich nicht von der analytischen Lösung, auf der die Analyse der Intensität der Bragg-Reflexe im vorigen Abschnitt beruht (Abb. 7.11). Die Maxima für die Phasendifferenz aus der Simulation mit dem „weichen“ Potential $\Delta\varphi(E_{\perp})$ bei $h=0,87 \text{ \AA}$ sind hingegen zu höheren E_{\perp} verschoben (grüne gestrichelte Kurve). Für einen O-Abstand von $h=0,96 \text{ \AA}$ ergibt sich fast die gleiche Intensitätsmodulation (blaue Strich-Punkt-Kurve) wie für die harte Wand bei $h=0,87 \text{ \AA}$. Ein in Harte-Wand-Näherung bestimmter Abstand von $h=0,87 \text{ \AA}$ entspricht also dem tatsächlichen Abstand $h^*=0,96 \text{ \AA}$. Auf diese Weise kann man für jedes Potential die in Harte-Wand-Näherung bestimmten Werte h und Δz korrigieren. Die Prozedur wurde im nächsten Abschnitt für alle vier untersuchten Gitterführungs Kanäle angewandt.

Zusammenfassung: Die Korrugation des He-c(2x2)O/Fe(110)-Potentials ist vom Abstand h der O-Adsorbat-Atome zur obersten Lage der Fe(110)-Oberfläche abhängig. Daher kann h aus der experimentell bestimmten Korrugation ermittelt werden. Aus der Simulation der Intensität der nullten Beugungsordnung kann eine Korrektur für die Unterschätzung der Korrugation und damit von h aufgrund der Analysen in Harte-Wand-Näherung abgeleitet werden.

7.1.5 Vertikale Position des adsorbierten Sauerstoffs

Um die Korrugation des effektiven Potentials quer zu den vier untersuchten Gitterführungs Kanälen mit dem Abstand h des O-Atoms zur obersten Ebene der Fe(110)-Oberfläche in Beziehung zu setzen, wurde für verschiedene Abstände h die volle Korrugation Δz der zu E_{\perp} korrespondierenden Äquipotentialflächen des entlang der jeweiligen Richtung gemittelten He-c(2x2)O/Fe(110)-Potentials berechnet. In Abb. 7.20 werden einige der berechneten Kurven $\Delta z(E_{\perp}, h)$ für das Potential basierend auf den neutralen He-Fe- und He-O-HF-Potentialen gezeigt. Die Ergebnisse aus der Analyse der Intensität der Beugungsmaxima in Harte-Wand-Näherung sind als graue Kreuze eingezeichnet. Die Kreuze aus Abb. 7.20a und 7.20c entsprechen den grauen Kreisen

⁴($Y_0^2 + J_0^2$) ist die Einhüllende von J_0^2 ; Y_n sind die Bessel-Funktionen zweiter Art.

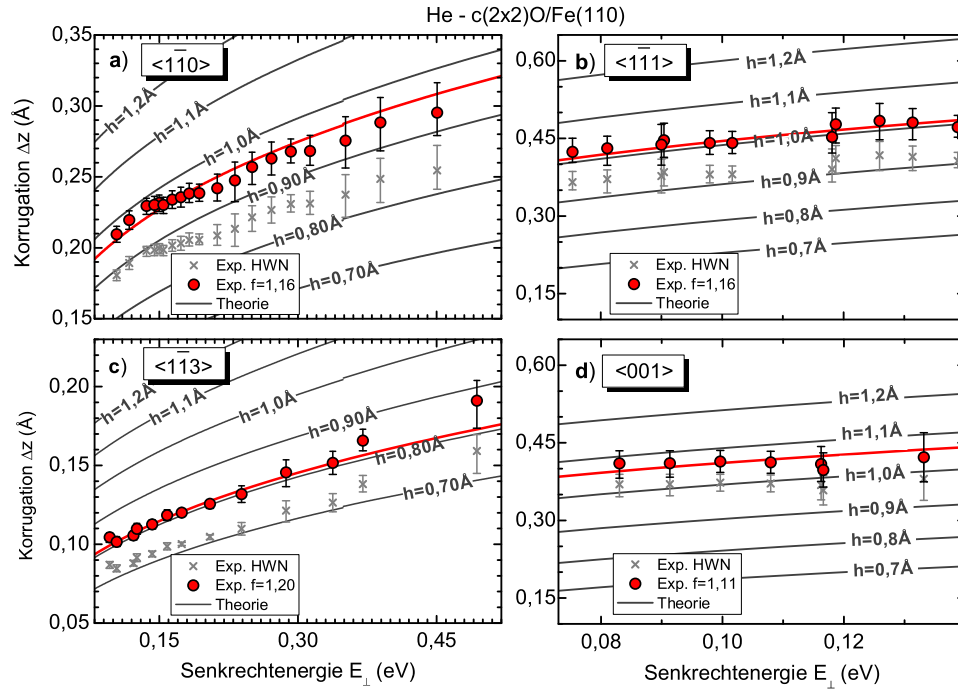


Abb. 7.20: Korrugation Δz als Funktion von E_{\perp} für die Streuung von He-Atomen an $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang a) $\langle 110 \rangle$ -, b) $\langle 111 \rangle$ -, c) $\langle 113 \rangle$ - und d) $\langle 001 \rangle$ -Richtung. Kreuze: Ergebnisse der besten Anpassung der theoretischen Intensitätsverteilung in Harte-Wand-Näherung (HWN) an die experimentellen Beugungsmuster wie in Abb. 7.9, 7.10 und 7.12 gezeigt. Rote Kreise: mit Faktor f korrigierte Werte zur Berücksichtigung der Weichheit des Potentials. Kurven: theoretische Korrugation des Potentials aus der Superposition der He-Fe- und He-O-HF-Potentiale (Abb. 7.17) für unterschiedliche Abstände h des O-Atoms wie angegeben (graue Kurven) und für $h = h^*$ aus Tab. 7.3 (rote Kurven).

aus Abb. 7.11b bzw. 7.11d. Der Abstand h mit der besten Übereinstimmung mit den experimentellen Werten ohne Korrektur bezüglich der Harte-Wand-Näherung ist in der dritten Spalte von Tab. 7.3 aufgeführt ($h_{\text{He-O}}$). Um den Einfluss der Wahl des interatomaren Potentials auf die Anpassung von h abzuschätzen, wurde die gleiche Prozedur unter Verwendung des OCB-Potentiale durchgeführt. Diese Ergebnisse finden sich in der zweiten Spalte (h_{OCB}). Für ein adäquates Potential sollte h für alle Gitterführungsrichtungen und über den gesamten experimentell zugänglichen Bereich von E_{\perp} gleich sein. Während sich mit dem OCB-Potential aus den Daten für die $\langle 110 \rangle$ - und die $\langle 113 \rangle$ -Richtung größere Werte für h ergeben als aus den Daten für die $\langle 111 \rangle$ - und die $\langle 001 \rangle$ -Richtung, ist es bei Verwendung der He-Fe- und He-O⁰-HF-Potentiale genau umgekehrt. Die Unterschiede sind jedoch geringer.

Aus den in Harte-Wand-Näherung ermittelten Werten für h wurden

Tab. 7.3: Beste Anpassung des senkrechten Abstands des adsorbierten O-Atoms zur obersten Ebene des Fe-Gitters für Rechnung mit dem OCB-Potential [49] und den He-Fe- und He-O⁰- bzw. den He-Fe- und He-O⁻-HF-Potentialen (Abb. 7.17). h : Ergebnis in Harte-Wand-Näherung. h^* : Ergebnis mit Korrektur für das „weiche“ Potential in Harte-Wand-Näherung.

	h_{OCB} (Å)	$h_{\text{He-O}}$ (Å)	$h_{\text{He-O}}^*$ (Å)	$h_{\text{He-O}(-)}$ (Å)	$h_{\text{He-O}(-)}^*$ (Å)
$\langle 1\bar{1}0 \rangle$	1,15	0,87	0,96	0,87	0,95
$\langle 1\bar{1}3 \rangle$	1,06	0,72	0,81	0,75	0,85
$\langle 1\bar{1}1 \rangle$	0,70	0,93	1,01	0,75	0,80
$\langle 001 \rangle$	0,91	1,0	1,06	0,85	0,88

nun, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, die korrigierten Werte h^* und Δz ermittelt. Für die in Abb. 7.19 betrachtete $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung entspricht der Wert $h = 0,87$ Å aus der Harte-Wand-Näherung einem tatsächlichen Abstand von $h^* = 0,96$ Å für das Potential aus He-Fe- und He-O-HF-Potentialen. Die korrigierten Werte h^* für alle vier Richtungen sind in der letzten Spalte von Tab. 7.3 aufgelistet ($h_{\text{He-O}}^*$). Die sich mit diesen Abständen ergebenden Korrugationen $\Delta z(E_{\perp})$ sind in Abb. 7.20 als rote Kurven, die korrigierten experimentellen Werte als rote Kreise dargestellt. Diese können in guter Näherung aus den unkorrigierten Werten (Kreuze) durch Skalierung mit dem Korrekturfaktor $f \approx \Delta z(h^*, E_{\perp}) / \Delta z(h, E_{\perp})$ gewonnen werden, der in der jeweiligen Legende in Abb. 7.20 angegeben ist. Die korrigierten experimentellen Werte folgen bei allen vier Richtungen dem Verlauf der theoretischen Kurve. Bei Verwendung des OCB-Potentials gab es hingegen deutliche Abweichungen. Die Streuung der für die vier Kanäle abgeleiteten Werte h^* wird der unzureichenden Beschreibung des He-c(2x2)O/Fe(110)-Potentials zugeschrieben, in der die Oberfläche durch eine Anordnung freier und ungestörter Atome unter Vernachlässigung anziehender Kräfte genähert wird.

Wird der teilweise ionische Charakter [474] des an der Oberfläche gebundenen O-Atoms berücksichtigt, indem in der Berechnung statt des neutralen He-O-Potentials das He-O⁻-Potential verwendet wird, dann ergeben sich nach der gleichen Prozedur wie oben etwas andere Werte für die beste Anpassung der vertikalen Position des adsorbierten Sauerstoffs. Die Ergebnisse für den korrigierten und den unkorrigierten Wert sind jeweils in der fünften ($h_{\text{He-O}(-)}$) bzw. sechsten Spalte ($h_{\text{He-O}(-)}^*$) von Tab. 7.3 aufgelistet. Diese Werte streuen weniger als bei der Verwendung der neutralen HF-Paarpotentiale. Die Übereinstimmung der experimentellen Daten mit der jeweiligen theoretischen Kurve $\Delta z(E_{\perp})$ ist ähnlich gut bzw. besser als für die Daten in Abb. 7.20. Diese Näherung

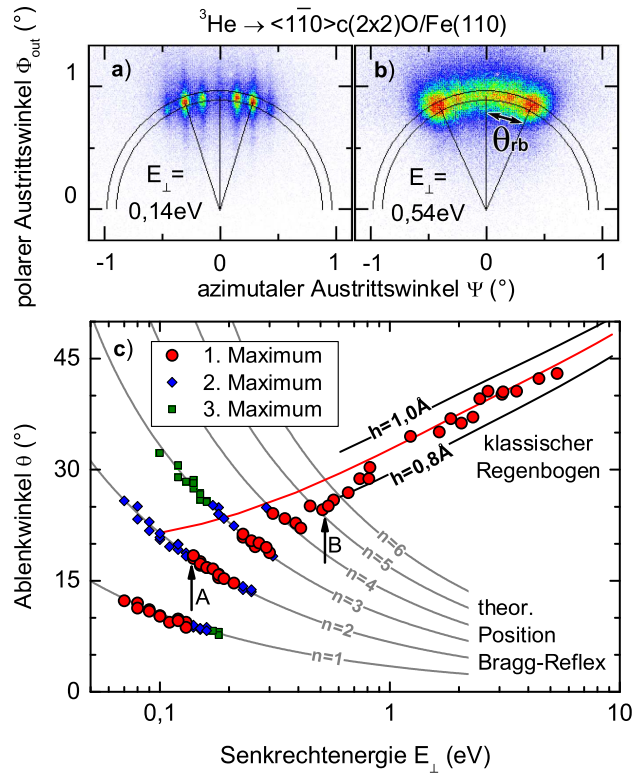


Abb. 7.21: Klassischer Regenbogen und Quanten-Regenbogen für die Streuung von ^3He -Atomen an $\text{c}(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung. Oben: Intensitätsverteilung für a) $E_0 = 0,5 \text{ keV}$ und b) $E_0 = 2,0 \text{ keV}$ unter sonst gleichen Bedingungen ($\Phi_{\text{in}} = 0,94^\circ$). c) Ablenkungswinkel θ als Funktion von E_{\perp} des höchsten (rote Kreise), des zweithöchsten (blaue Rauten) und des dritthöchsten Maximums (grüne Quadrate). A und B markieren die Datenpunkte, die aus den in a) und b) gezeigten Intensitätsverteilungen gewonnen wurden. Als graue Kurven sind die theoretischen Winkelpositionen der Bragg-Reflexe für $1 \leq n \leq 6$ eingezeichnet. Weiterhin sind die Ergebnisse der Simulation des klassischen Regenbogenwinkels θ_{rb} für einen Abstand der adsorbierten O-Atome zur Fe-Oberfläche von $h = 0,9 \text{ \AA}$ (rote Kurve) und $0,8 \text{ \AA}$ bzw. $1,0 \text{ \AA}$ (schwarze Kurven) bei Nutzung der HF-Potentiale (Abb. 7.17) gegeben.

ist also etwas besser als die Superposition der neutralen Paarpotentiale. Dennoch unterscheidet sich der größte Wert für h^* vom kleinsten um $0,15 \text{ \AA}$. Diese Abweichung ist deutlich größer als die Streuung der experimentellen Daten aus der Anpassung der Intensität der Beugungsreflexe. Das Potential ist also immer noch eine relativ grobe Näherung. Im Mittel beträgt der korrigierte Abstand $h^* = (0,9 \pm 0,2) \text{ \AA}$.

Gerade für den Bereich $V < 1 \text{ eV}$ ist die Superposition von Paar-Potentialen eine eher schlechte Näherung. Das Potential vor einer unbedeckten Metalloberfläche lässt sich in diesem Energiebereich nicht auf

diese Weise beschreiben (siehe z.B. Abb. 6.7), da die quasifreien Elektronen des Metalls in der Näherung nicht richtig berücksichtigt werden. Dies könnte auch bei bedeckten Metalloberflächen zu Abweichungen führen. Bei Senkrechtenenergien $E_{\perp} > 1$ eV ist die Superposition von Paar-Potentialen eine bessere Näherung. Hier geht das Beugungsmuster jedoch in eine klassischen Intensitätsverteilung über. Aber auch der klassische Regenbogenwinkel θ_{rb} hängt von der Korrugation und damit von der vertikalen Position h ab. Mit dem Potential auf Basis des He-Fe- und des He-O⁻-Potentials ergibt sich für die untersuchten Richtungen eine gute Übereinstimmung zwischen den theoretischen und den experimentellen klassischen Regenbogenwinkeln θ_{rb} . Als Beispiel wird in Abb. 7.21 die Streuung von ³He-Atomen an c(2×2)O/Fe(110) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung betrachtet. Die roten Kreise in Abb. 7.21c repräsentieren die Ablenkwinkel θ des jeweils höchsten Maximums der Intensitätsverteilung als Funktion der Senkrecht-Energie E_{\perp} . Für $E_{\perp} \gtrsim 1$ eV entspricht das höchste Maximum dem klassischen Regenbogen θ_{rb} . Eine solche klassische Intensitätsverteilung ist in Abb. 7.21b gezeigt. Der Regenbogenwinkel θ_{rb} ist markiert. Für $E_{\perp} \lesssim 0,5$ eV erscheinen Beugungslinien, wie sie in Abb. 7.21a zu sehen sind. Die Position dieser diskreten Maxima fallen mit den durch die Bragg-Bedingung Gl. (2.62) erlaubten Positionen zusammen, welche in Abb. 7.21c für $1 \leq n \leq 6$ als graue Kurven eingezeichnet sind. Der Ablenkwinkel des intensivsten Maximums, des Quanten-Regenbogens $m=0$, ist immer etwas kleiner als der klassische Regenbogen [139]. Dieser Unterschied wächst mit sinkendem E_{\perp} . Andererseits sind Beugungsordnungen auf der klassisch verbotenen, „dunklen Seite“ des Regenbogens $\theta > \theta_{rb}$ erkennbar. Die Ablenkwinkel der jeweils zweit- und dritt-intensivsten Reflexe sind in Abb. 7.21c als blaue Rauten bzw. grüne Quadrate dargestellt. Die Datenpunkte, die aus den Intensitätsverteilungen in Abb. 7.21a und 7.21b gewonnen wurden, sind mit „A“ bzw. „B“ markiert. Diese Darstellung illustriert den Übergang von Beugung zu klassischer Regenbogenstreuung bei höheren Energien. Die dicken durchgezogenen Kurven repräsentieren die Regenbogenwinkel θ_{rb} aus der klassischen Simulation für verschiedene Abstände h der O-Atome. Für $h = 0,9$ Å (rote Kurve) ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Dieses Ergebnis bestätigt den aus den Beugungsmustern mit dem gleichen Potential abgeleiteten Wert. Eine ähnlich gute Übereinstimmung von θ_{rb} ergibt sich für die anderen untersuchten Gitterführungskanäle, was die Konsistenz der Analysen zeigt.

Das experimentelle Ergebnis $h^* = (0,9 \pm 0,2)$ Å stimmt mit den DFT-Rechnungen von Błoński *et al.* überein. Für eine Sauerstoff-Bedeckung von 1/4 ML auf Fe(110) – welche der c(2×2)O/Fe(110)-Überstruktur

entspricht – wurde ein Abstand von $h = 1,0 \text{ \AA}$ berechnet [481]. Das Ergebnis ist auch im Einklang mit dem Befund von Erley und Ibach [472], dass die Daten aus Elektronen-Energieverlustspektroskopie-Messungen an $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ einer Bindungslänge von $1,8 \text{ \AA}$ zwischen Fe- und O-Atom nicht widersprechen. Diese Bindungslänge entspricht einem Abstand $h = 1,1 \text{ \AA}$.

Die Streuung der ermittelten Abstände h^* für die vier Richtungen (vergl. Tab. 7.3) ist deutlich größer als die Genauigkeit der Analyse der Intensität der Bragg-Reflexe. Für ein Potential, das die Realität exakt beschreibt, sollte h^* unabhängig von der Gitterführungsrichtung sein. Die Beugung schneller Atome bietet intrinsisch eine hohe Präzision, da die Beugungsmuster sehr sensitiv vom Abstand h abhängen. Die Genauigkeit des abgeleiteten Abstands wird jedoch durch die Unsicherheit des verwendeten He-Oberfläche-Potentials begrenzt. Sie könnte erheblich gesteigert werden, wenn ein höher entwickeltes Potential z.B. aus einer DFT-Rechnung verfügbar wäre.

Zusammenfassung: Aus der Intensität der Reflexe bei der Beugung schneller Atome an Adsorbat-Überstrukturen lässt sich auf die vertikale Position der Adsorbat-Atome schließen. Für die $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ -Überstruktur wurde ein Abstand von $(0,9 \pm 0,2) \text{ \AA}$ zwischen den O-Atomen und der obersten Atomlage der $\text{Fe}(110)$ -Oberfläche ermittelt. Die Genauigkeit wird durch die Unsicherheit des Wechselwirkungspotentials begrenzt und könnte deutlich gesteigert werden.

7.1.6 Überzählige Regenbögen

Bei der Beugung schneller Atome treten zwei verschiedene Arten von Interferenzmuster auf: die Bragg-Reflexe und die überzähligen Regenbögen. Treten sie gemeinsam auf, dann äußert sich dies in der Modulation der relativen Intensität der Bragg-Reflexe, die in den vorherigen Abschnitten betrachtet wurde. Es gibt aber auch den Fall, dass die Kohärenz für jeweils einen der beiden Beugungsmechanismen nicht ausreicht. Bei der Streuung von H_2 -Molekülen an $\text{LiF}(001)$ entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung treten z.B. Beugungslinien ohne eine Modulation der relativen Intensität auf (Abb. 5.3c, S. 121). Die Kohärenz für die Interferenz zwischen den Trajektorien vom Typ *A* und *B* (Abb. 2.21), welche die überzähligen Regenbögen erzeugt, ist zu gering. Das Potential ist vom Winkel der Achse des H_2 -Moleküls zur Oberfläche abhängig, verursacht durch die unterschiedliche Polarisierung des Moleküls im Feld der parallelen Li^+ - und F^- -Ketten. Das Potential ist damit für jedes Projektil etwas anders. Wie die überzähligen Regenbögen des at-

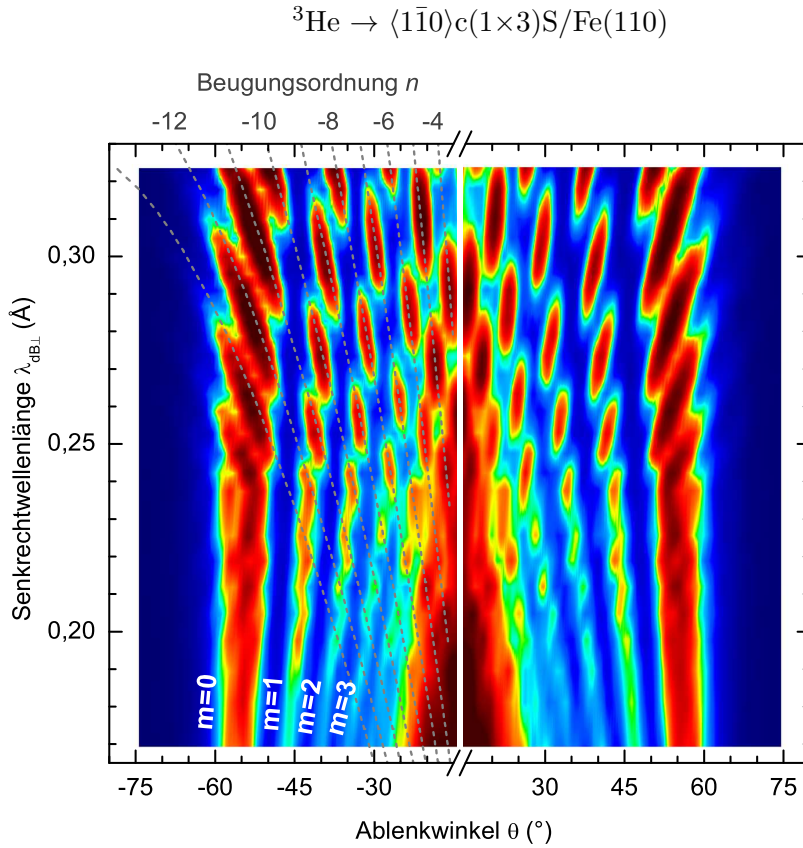


Abb. 7.22: Beugungskarte für die Streuung von ${}^3\text{He}$ -Atomen an $\text{c}(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung als Funktion des Ablenkungswinkels θ und der Senkrechtde-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{\text{dB.L.}}$. Die grauen gestrichelten Kurven markieren die theoretische Position θ_n der Bragg-Reflexe für $-13 < n < -4$. Der Regenbogen ($m=0$) sowie der erste ($m=1$) bis dritte ($m=3$) überzählige Regenbogen sind in der Grafik markiert.

mosphärischen Regenbogens bei unterschiedlich großen Regentropfen (Abb. 2.6) nicht nachweisbar sind, so sind sie auch bei Streuung in unterschiedlichen Potentialen nicht mehr aufzulösen. Da die Periodizität des Potentials aber konstant ist, bleibt die Kohärenz für die Interferenz zwischen den symmetrisch äquivalenten Trajektorien vom Typ A und A^* erhalten. Die Bragg-Reflexe sind daher wohldefiniert. Umgekehrt sind in einigen Fällen die überzähligen Regenbögen auch dann noch zu beobachten, wenn die Kohärenz zwischen den Trajektorien vom Typ A und A^* nicht mehr ausreicht. In diesem Abschnitt werden zwei solche Fälle anhand der Streuung an Überstrukturen diskutiert.

Die Streuung von He-Atomen an der $\text{c}(1 \times 3)\text{S}$ -Überstruktur ist ein anschauliches Beispiel, um nochmals den Zusammenhang zwischen den

überzähligen Regenbögen und der Modulation der Bragg-Reflexe zu demonstrieren. In Abb. 7.22 ist die Beugungskarte (Abschn. 2.3.5) aus der Streuung von ^3He -Atomen an der $c(1\times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ -Überstruktur entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung gezeigt. Auf der linken Seite markieren die grauen gestrichelten Kurven die theoretische Position θ_n der Bragg-Reflexe für $-13 < n < -4$ und kennzeichnen damit, welche Intensitätsmaxima zur gleichen Beugungsordnung n gehören. Für $\lambda_{\text{dB}\perp} < 0,22 \text{ \AA}$ sind keine diskreten Bragg-Reflexe auflösbar. Nur das Maximum des Quanten-Regenbogens $m = 0$ und die Maxima der überzähligen Regenbögen $m = 1$ bis $m = 3$ sind erkennbar. Folgt man dem Verlauf der Maxima m geradlinig zu höheren $\lambda_{\text{dB}\perp}$, dann liegen die Bragg-Maxima, die zum selben überzähligen Regenbogen m gehören, auf der gleichen Geraden. Da θ_n mit steigendem $\lambda_{\text{dB}\perp}$ größer wird, während sich die Winkelposition der überzähligen Regenbögen m verringert, oszilliert die Intensität der Bragg-Reflexe mit $\lambda_{\text{dB}\perp}$. Umgekehrt können die überzähligen Regenbögen bei $\lambda_{\text{dB}\perp} < 0,22 \text{ \AA}$ auch als Überlagerung der Maxima verschiedener nicht auflösbarer Ordnungen n der jeweils gleichen Ordnung m betrachtet werden.

Bei der Streuung von schnellen Ne-Atomen können keine diskreten Bragg-Reflexe aufgelöst werden. Für Streuung entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung der $c(1\times 3)\text{S}$ -Überstruktur ist der Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ im experimentell zugänglichen Bereich von $E_0 > 0,4 \text{ keV}$ kleiner als die azimutale Breite der Beugungslinien, die durch die Divergenz des einfallenden Atomstrahls bestimmt wird (Abb. 5.9). In diesem Sinne ist die Kohärenz – bedingt durch die Divergenz des Atomstrahls – zu gering, um diskrete Bragg-Reflexen aufzulösen. Die überzähligen Regenbögen m sind hingegen weit genug getrennt, um sie experimentell beobachten zu können. In Abb. 7.23a ist die Intensitätsverteilung für Streuung von Ne-Atomen mit $E_0 = 1 \text{ keV}$ an $c(1\times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung gezeigt. In Abb. 7.23b ist die projizierte Intensität innerhalb des in a) eingezeichneten Kreistrings als Funktion des Ablenkwinkels θ dargestellt. Neben dem Quanten-Regenbogen $m = 0$ zeigen sich zwei überzählige Regenbögen $m = 1$ und $m = 2$. Mit Erhöhung der Projektilenergie E_0 verringert sich der Abstand der überzähligen Regenbögen zueinander und das Verhältnis ihrer Amplituden zum Untergrund. Bis $E_0 = 4 \text{ keV}$ sind die überzähligen Regenbögen noch auflösbar, wie in Abb. 7.23d zu erkennen ist. Bei noch höheren Energien ist die Kohärenz auch für diesen Beugungsmechanismus zu gering.

Beugung schneller Atome in Form von Bragg-Reflexen wird nur bei Streuung von neutralen Projektilen beobachtet. Die überzähligen Regenbögen treten hingegen auch mit He^+ -Ionenstrahlen auf. Zur Illustration ist in Abb. 7.24a die Intensitätsverteilung für die Streuung von

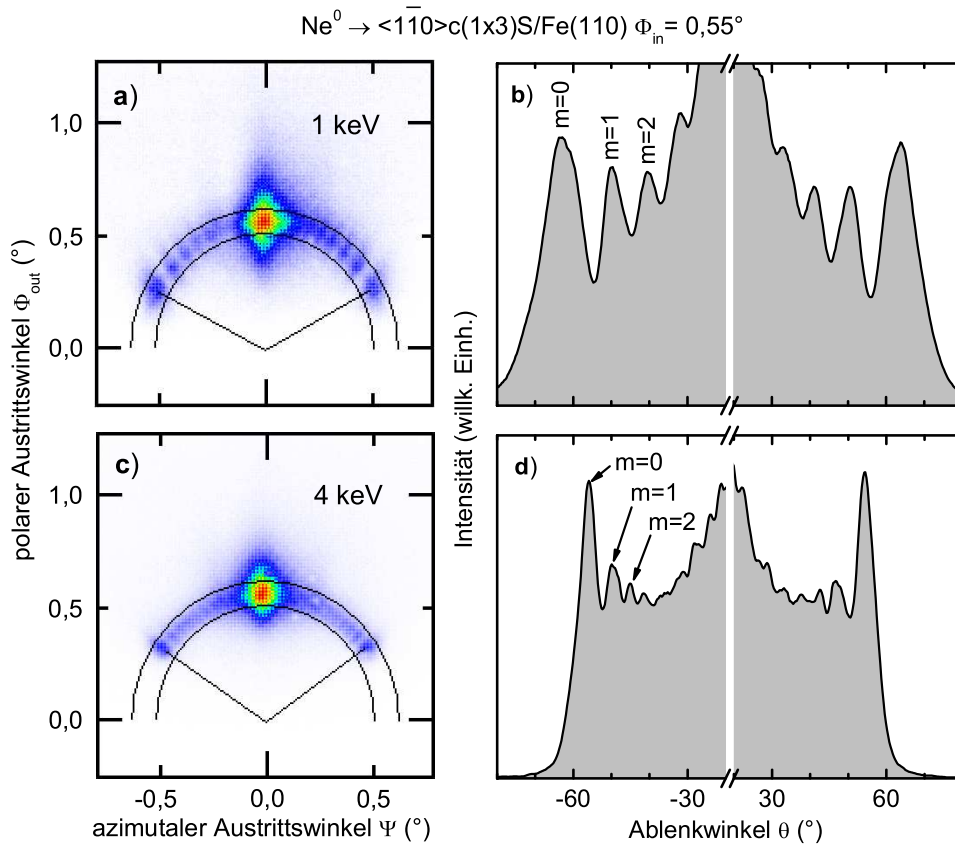


Abb. 7.23: Überzählige Regenbögen bei der Streuung von Ne-Atomen an $\text{c}(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ mit $E_0 = 1 \text{ keV}$ (oben) und 4 keV (unten) entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 0,55^\circ$. Links: Mit dem MCP-Detektor aufgenommene Intensitätsverteilung. Rechts: Projizierte Intensität innerhalb des Kreistrings elastisch gestreuter Projektile als Funktion des Ablenkwinkels θ mit dem Quanten-Regenbogen ($m=0$) sowie dem ersten ($m=1$) und zweiten ($m=2$) überzähligen Regenbogen.

$^3\text{He}^0$ -Atomen und $^3\text{He}^+$ -Ionen mit $E_0 = 3 \text{ keV}$ an $\text{c}(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ unter einem Einfallswinkel von $\Phi_{\text{in}} = 0,65^\circ$ entlang einer $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung gezeigt. Die Intensität auf dem kleineren Halbkreis stammt von einfallenden neutralen He-Atomen, die auf dem größeren Halbkreis von einfallenden He^+ -Ionen. Man kann solch eine Streuverteilung mit einem gemischten Strahl erzeugen oder nacheinander zuerst He^0 -Atome und dann He^+ -Ionen unter sonst gleichen Bedingungen streuen. He^+ -Ionen neutralisieren vor der Oberfläche, bevor sie den Umkehrpunkt erreichen. Sie unterliegen bis zur ihrer Neutralisation der anziehenden Bildladungswechselwirkung [90–92]. Der tatsächliche, mikroskopische Einfallswinkel ist daher größer als der makroskopisch eingestellte Winkel Φ_{in} . Daher treffen die gestreuten Projektile den Detektor

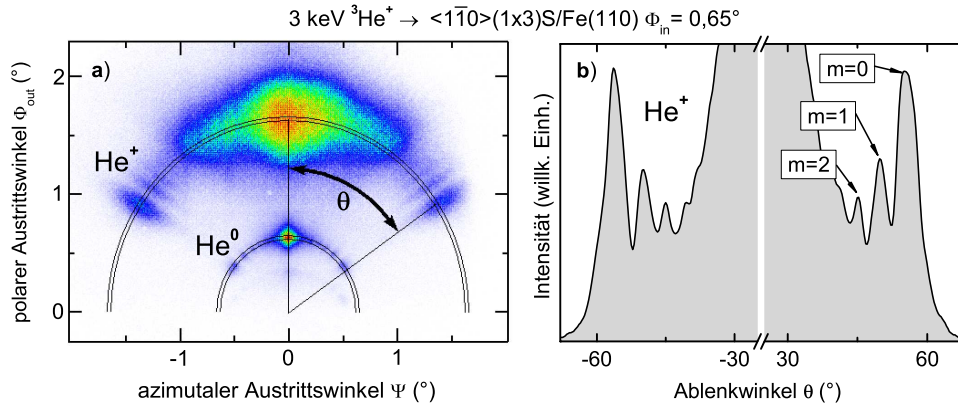


Abb. 7.24: Überzählige Regenbögen bei der Streuung von He^+ -Ionen. **a)** Intensitätsverteilung für die Streuung von ${}^3\text{He}^0$ -Atomen und ${}^3\text{He}^+$ -Ionen mit $E_0 = 3 \text{ keV}$ an $c(1 \times 3)\text{S/Fe}(110)$ entlang $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung unter $\Phi_{\text{in}} = 0,65^\circ$. **b)** Projizierte Intensität innerhalb des in a) eingezeichneten Kreisrings für die He^+ -Ionen als Funktion des Ablenkungswinkels θ mit Quanten-Regenbogen ($m=0$) sowie erstem ($m=1$) und zweitem ($m=2$) überzähligen Regenbogen.

auf einem Kreisring mit größerem, dem mikroskopischen Einfallswinkel entsprechenden Radius. Die Intensität innerhalb des Kreisrings für He^+ -Ionen ist in Abb. 7.24b als Funktion des Ablenkungswinkels θ dargestellt. Das Intensitätsmaximum mit dem größten Winkel θ ist der Quanten-Regenbogen $m=0$. Für etwas kleinere Winkel θ sind deutlich zwei überzählige Regenbögen $m=1$ und $m=2$ zu erkennen. Das Auftreten von Beugungsmustern für Ionen war nicht zu erwarten. Zwar sind die Projektile während des eigentlichen Streuprozesses neutral, jedoch – da der Ort der Neutralisation durch einen statistischen Prozess bestimmt wird – werden sich zwei Trajektorien sogar dann unterscheiden, wenn sie den gleichen Stoßparameter haben. So kommt es zu einer zufälligen Phasenverschiebung zwischen den verschiedenen möglichen Wegen eines Projektils zum selben Ort. Solch ein Ladungsaustausch ist daher eigentlich ein effizienter Dekohärenzprozess. Da sich in der Nähe des Regenbogens die Stoßparameter der beiden verschiedenen interferierenden Trajektorien mit gleichem Ablenkungswinkel vom Typ A und B nur wenig unterscheiden, ist die nötige Kohärenzlänge jedoch deutlich geringer als für die Interferenz der Trajektorien vom Typ A und A^* , bei der die Kohärenzlänge größer als die Breite des Gitterführungschanals d sein muss (Abb. 2.21). Daher zeigen sich, trotz der hohen Projektilenergie ($E_0 = 3 \text{ keV}$) sowie des hohen mikroskopischen Einfallswinkels ($\approx 1,6^\circ$) und obwohl der Austausch einer Ladung erheblich zur Dekohärenz beitragen sollte, Interferenzmuster in Form von überzähligen Regenbögen. Dieser Effekt wurde auch bei Streuung von He^+ -Ionen an

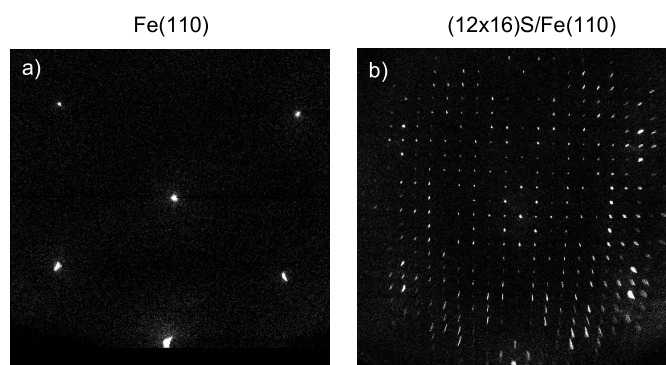


Abb. 7.25: LEED-Muster a) der sauberen Fe(110)-Oberfläche nach der Präparation und b) nach der Ausbildung einer „(12×16)S“-Überstruktur durch Segregation von S-Fremdatomen aus dem Fe-Kristall. Beide Aufnahmen mit 93 eV Elektronenenergie.

LiF(001) beobachtet.

Zusammenfassung: Bei der Streuung von He-Atomen an c(1×3)S/Fe(110) sind die überzähligen Regenbögen auch dann noch zu beobachten, wenn diskrete Beugungslinien nicht mehr auflösbar sind. Bei Streuung von Ne-Atomen können keine Beugungslinien aufgelöst werden, die überzähligen Regenbögen sind jedoch bis 4 keV Projektilenergie zu erkennen. Bei der Streuung von He⁺-Ionen treten Interferenzmuster in Form von überzähligen Regenbögen auf, obwohl die Neutralisation der Ionen vor der Oberfläche ein effizienter Dekohärenzprozess ist.

7.2 „(12x16)S/Fe(110)“

7.2.1 Struktur und Präparation

Bei den Versuchen, eine geordnete c(1×3)S/Fe(110)-Überstruktur durch Segregation von S-Atomen aus dem Fe-Festkörper zu präparieren, wurde auch noch eine weitere, bislang unbekannte Struktur beobachtet, die sich durch ein wohldefiniertes LEED-Bild auszeichnet. Wenn die Anzahl oder Dauer der Heizzyklen zu groß gewählt wurde, dann bildete sich eine Überstruktur mit dem in Abb. 7.25b gezeigten LEED-Muster. Es wurde auch gezielt die c(1×3)S-Struktur durch weiteres Heizen in diese Struktur überführt. Sie ließ sich auch durch längeres Heizen und höhere Temperaturen nicht mehr ändern und konnte nur noch durch Sputtern wieder entfernt werden. Es scheint sich also um ein Gleichgewicht bzw. die Struktur bei Sättigung bei der Segregation von Schwefel zu handeln. Diese Überstruktur wird hier diskutiert, um zu zeigen, dass

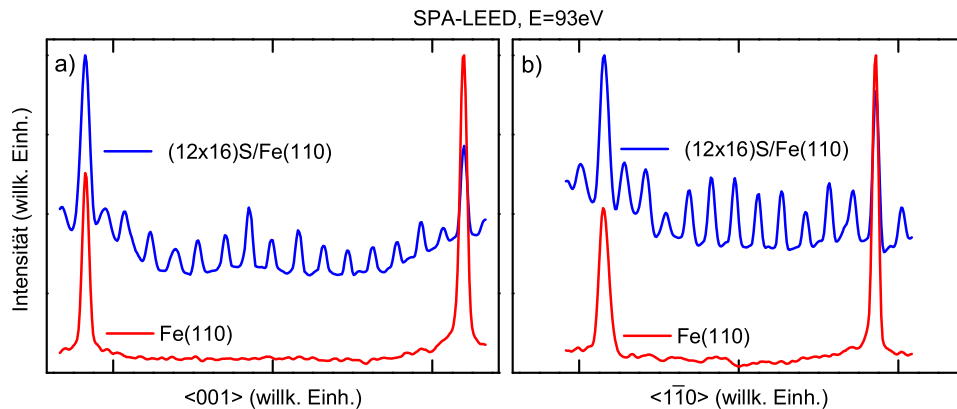


Abb. 7.26: Projektionen der Intensität der LEED-Reflexe der sauberen Fe(110)-Oberfläche aus Abb. 7.25a (rote Kurven) und der „(12×16)S/Fe(110)“-Überstruktur aus Abb. 7.25b (blaue Kurven).

die Beugungsmuster aus der Streuung schneller Atome zu den LEED-Mustern komplementäre Informationen enthalten.

Da die Reflexe vom Fe-Substrat in Abb. 7.25b kaum als Referenzpunkte zu erkennen sind, wurde die Intensität aus Abb. 7.25a und aus einem mehrere Reflexe breiten Bereich von Abb. 7.25b auf ganzer Länge jeweils auf Abszisse und Ordinate projiziert und in Abb. 7.26 gegenübergestellt. Man kann deutlich erkennen, dass 15 bzw. elf zusätzliche Reflexe äquidistant zwischen den Reflexen des Fe-Substrats auftauchen. Die Struktur wird daher hier vorläufig mit „(12×16)S/Fe(110)“ bezeichnet, obwohl noch kein Strukturvorschlag für diese bislang unbekannte Überstruktur abgeleitet wurde. Das Verhältnis der Auger-Maxima (peak-to-peak-ratio) betrug $S(152\text{ eV})/Fe(703\text{ eV}) \approx 1,5$ bei einer primären Elektronenenergie von 3 keV. Daraus kann man schließen, dass sich weit mehr als eine Monolage S auf der Oberfläche befinden muss. Es handelt sich also definitiv nicht um eine einfache (12×16)-Anordnung von einzelnen S-Atomen. Solch eine einfache Anordnung passt auch nicht zu den Triangulationskurven, die mittels MCP-Streuverteilungen aufgenommen wurden.

Bei einer sogenannten Regenbogen-Triangulationskurve ist die Intensität in einem schmalen Fenster von polarem und azimuthalem Austrittswinkel als Funktion des azimuthalen Einfallswinkels γ_{in} aufgetragen. Das Auswahlfenster wird dabei gerade groß genug gewählt, um den größten Teil der Intensitätsverteilung bei Streuung in Random-Richtung einzuschließen. Fällt γ_{in} mit einer Gitterführungsrichtung der Oberfläche zusammen, dann werden Projektile von den Atomketten aus der Einfallsebene abgelenkt und treffen außerhalb des Auswahlfensters auf den MCP-Detektor. Bildet man das Verhältnis I^{-1} von Gesamtin-

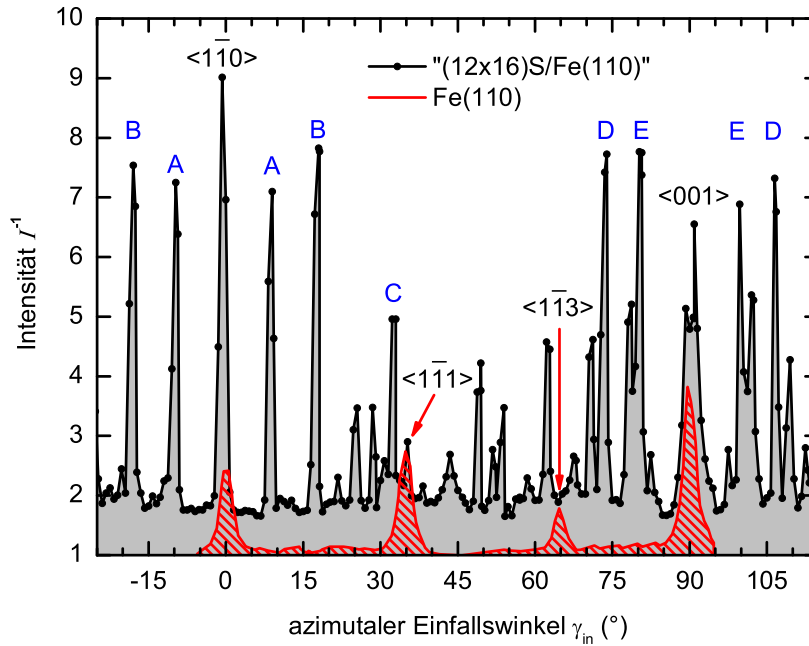


Abb. 7.27: Regenbogen-Triangulationskurven (siehe Text) für „(12×16)S/Fe(110)“ (schwarze Kurve) und unbedecktes Fe(110) (rote Kurve) bei Streuung der von 20 keV Ar- bzw. He-Atomen. Die nicht dargestellten Winkelbereiche sind zum dargestellten Bereich symmetrisch.

tensität zur spekularen Intensität innerhalb des Auswahlfensters, dann ergibt sich immer dann ein Maximum, wenn γ_{in} mit einer Gitterführungsrichtung zusammenfällt. Insbesondere wenn die Regenbogenmaxima weit außerhalb des Auswahlfensters liegen, zeigt die Regenbogen-Triangulationskurve $I^{-1}(\gamma_{in})$ eine besonders hohe Amplitude. Projektilsorte, Energie E_0 und Einfallswinkel Φ_{in} können die Höhe der Maxima beeinflussen, nicht aber deren Winkelposition γ_{in} .

In Abb. 7.27 sind die Triangulationskurven der „(12×16)S/Fe(110)“-Überstruktur und der reinen Fe(110)-Oberfläche gegenübergestellt. Die nicht dargestellten Winkelbereiche sind zum dargestellten Bereich symmetrisch. An der reinen Fe(110)-Fläche unterscheiden sich die Intensitätsverteilungen nur entlang der vier niedrig indizierten Richtungen von der Random-Streuverteilung. Auch bei den Al-Flächen waren in den Regenbogen-Triangulationskurven nur die niedrig indizierten Richtungen als Maxima erkennbar, nicht mehr als in den korrespondierenden Targetstromkurven, wie in Abb. 4.2 auf S. 97 für Streuung von 80 keV He^{2+} an Al(001) exemplarisch gezeigt. Nach der Präparation der „(12×16)S/Fe(110)“-Überstruktur finden sich deutlich mehr Richtungen mit einem ausgeprägten Regenbogen. Da die Genauigkeit von

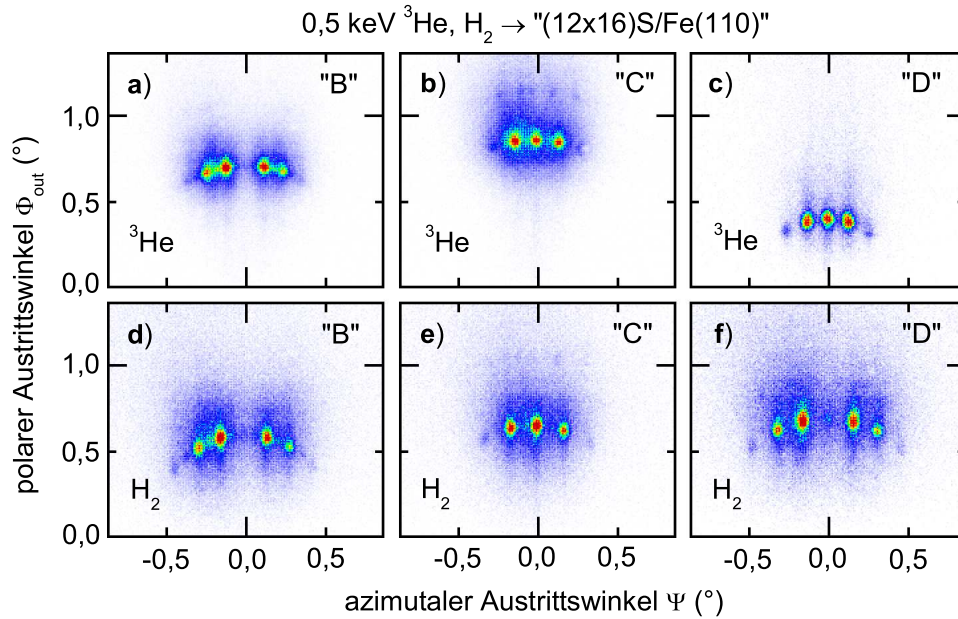


Abb. 7.28: Beugungsmuster bei der Streuung von ^3He -Atomen (oben) und H_2 -Molekülen (unten) an „(12×16)S/Fe(110)“ mit $E_0 = 0,5 \text{ keV}$ unter Einfallswinkeln im Bereich von $0,4^\circ < \Phi_{\text{in}} < 0,9^\circ$ entlang der mit „B“ (links), „C“ (Mitte) sowie „D“ (rechts) bezeichneten Gitterführungsrichtung aus Abb. 7.27.

γ_{in} zu gering bzw. die Schrittweite $\Delta\gamma_{\text{in}} = 0,75^\circ$ zu grob ist, um verschiedene hoch indizierte Gitterrichtungen trennen und korrekt benennen zu können, werden die im Folgenden untersuchten Gitterführungskanäle zwischen den beiden Hauptrichtungen $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ und $\langle 001 \rangle$ bis zur Aufklärung der Struktur mit Buchstaben von „A“ bis „E“ bezeichnet.

7.2.2 Winkelposition der Beugungslinien

Fast alle in Abb. 7.27 erkennbaren Gitterführungskanäle zeigen bei der Streuung von He-Atomen und H_2 -Molekülen wohldefinierte Beugungsmuster, wie in Abb. 7.28 für die Streuung entlang der mit „B“, „C“ und „D“ bezeichneten Richtungen exemplarisch gezeigt. Sowohl für die reine Fe(110)-Oberfläche, als auch für die $c(1 \times 3)\text{S}$ -Überstruktur gibt es entlang der Richtungen „A“ bis „E“ keine Gitterführungskanäle, d.h. es tritt dort – im Gegensatz zur Streuung an „(12 × 16)S“ – nur die Beugungsordnung $n = 0$ auf. Anders als bei der $c(1 \times 3)\text{S}$ -Überstruktur gibt es keinen Hinweis auf Bereiche der Oberfläche, wo sich die Überstruktur nicht vollständig ausgebildet hat bzw. darauf, dass eine zweite Phase koexistiert. In Abb. 7.28a, d und f ist das Fehlen der Beugungsordnung $n = 0$ bei $\Psi = 0$ deutlich zu erkennen. Wären auf der Oberfläche gleichzeitig zwei verschiedene Überstrukturen präsent, dann wäre die

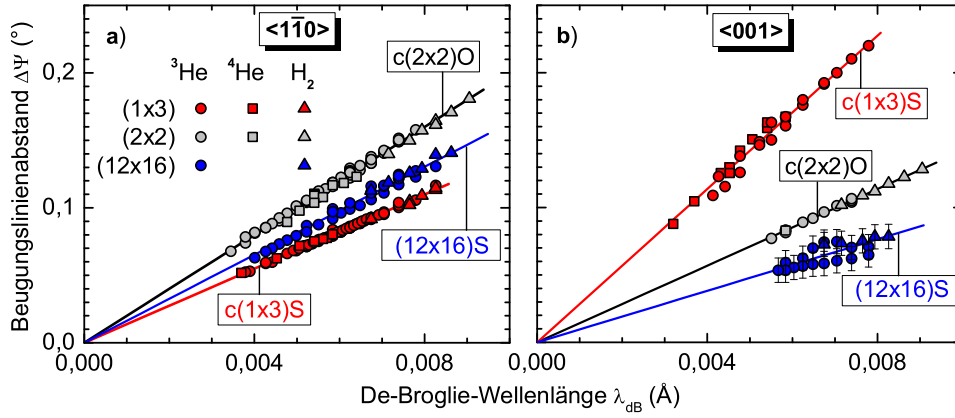


Abb. 7.29: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} für die Streuung von ^3He - (Kreise) und ^4He -Atomen (Quadrate) sowie H_2 -Molekülen (Dreiecke) an $c(1\times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ (rot), $c(2\times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ (grau) und „(12x16)S/Fe(110)“ (blau) entlang einer a) $\langle 110 \rangle$ - und b) $\langle 001 \rangle$ -Richtung. Die Linien repräsentieren die beste Anpassung einer linearen Funktion an die Datenpunkte.

Gitterführungsrichtung der ersten Struktur für die zweite Struktur eine Random-Richtung. Dies hätte einen intensiven Beugungsreflex der Ordnung $n = 0$ zur Folge.

Der Abstand der Beugungslinien $\Delta\Psi$ wurde für die Kanäle „A“ bis „E“ sowie für die $\langle 110 \rangle$ - und die $\langle 001 \rangle$ -Richtung als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} vermessen. Die Ergebnisse für die $\langle 110 \rangle$ - und die $\langle 001 \rangle$ -Richtung werden in Abb. 7.29 mit den Abständen $\Delta\Psi(\lambda_{dB})$ der Beugungslinien bei der Streuung an der $c(1\times 3)\text{S}$ - und der $c(2\times 2)\text{O}$ -Überstruktur aus Abschn. 7.1.2 verglichen. Für $\langle 110 \rangle$ liegt $\Delta\Psi(\lambda_{dB})$ für „(12x16)S“ zwischen den Werten der beiden anderen Überstrukturen, d.h. der laterale Abstand der symmetrisch äquivalenten Positionen der Äquipotentialflächen quer zur $\langle 110 \rangle$ -Richtung beträgt weder das zweifache – wie bei $c(2\times 2)\text{O}$ – noch das dreifache – wie bei $c(1\times 3)\text{S}$ – des Abstands der $\langle 110 \rangle$ -Atomketten der Fe(110)-Oberfläche (vergl. Abb. 7.1 und Tab. 7.1). Aus dem Anstieg s der angepassten linearen Funktion ergibt sich ein Abstand, der einem Verhältnis von $2,46 \pm 0,08$ zur theoretischen Breite d des Gitterführungskanals der unbedeckten Fe(110)-Fläche entspricht. Für die Streuung entlang der $\langle 001 \rangle$ -Richtung ist $\Delta\Psi$ geringer als bei den beiden anderen Überstrukturen (Abb. 7.29b). Hier entspricht die ermittelte Breite des Gitterführungskanals einem Verhältnis von $3,0 \pm 0,2$ bezüglich der Breite des entsprechenden Kanals des reinen Fe(110).

In Abb. 7.30 sind für die anderen untersuchten Gitterführungsrichtungen der „(12x16)S“-Struktur die ermittelte Beugungslinienabstände $\Delta\Psi$ als Funktion von λ_{dB} dargestellt. In allen Fällen ist $\Delta\Psi$ linear

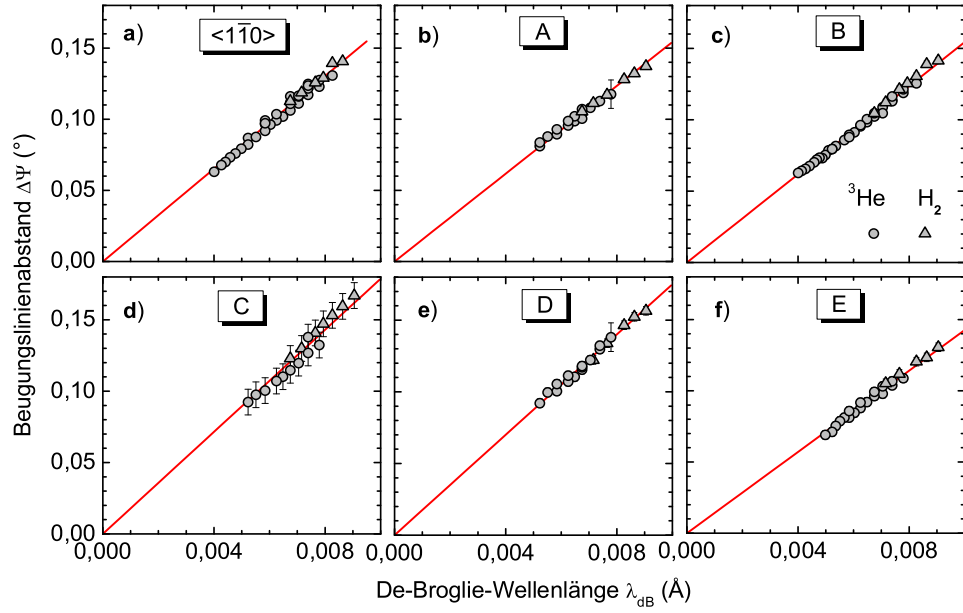


Abb. 7.30: Beugungslinienabstand $\Delta\Psi$ als Funktion der De-Broglie-Wellenlänge λ_{dB} für die Streuung von ^3He -Atomen (Kreise) und H_2 -Molekülen (Dreiecke) an „(12×16)S/Fe(110)“ entlang a) der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Richtung und b) bis f) entlang der mit „A“ bis „E“ bezeichneten Richtungen aus Abb. 7.27. Die Linien repräsentieren die beste lineare Anpassung an die Datenpunkte.

von λ_{dB} abhängig, unabhängig davon, ob ^3He -Atome oder H_2 -Moleküle gestreut werden. Aus dem Anstieg s der unter der Nebenbedingung $\Delta\Psi(\lambda_{dB} = 0) = 0$ angepassten linearen Funktion (rote Geraden) ergibt sich die Breite des Gitterführungschanals nach Gl. (5.2) zu $d = 180^\circ / s\pi$. Die Ergebnisse sind in Tab. 7.4 zusammengefasst. Aus der Modulation der Intensität der Bragg-Reflexe ließe sich auch auf die Korrugation der Oberfläche schließen. Da z.B. in Abb. 7.28a nur die Ordnungen $n = 1$ und $n = 2$ präsent sind, muss es sich bei dem Minimum der Beugungsordnung $n = 0$ um das zu $m = 1$ korrespondierende Minimum handeln (Abb. 2.20). Für die Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge von $\lambda_{dB\perp} = 0,577\text{\AA}$ ergibt sich die Korrugation in Harte-Wand-Näherung nach Gl. (2.74) bzw. Gl. (2.82) zu $\Delta z = \lambda_{dB\perp} 3/8 = 0,22\text{\AA}$.

Im Gegensatz zu den beiden bekannten Überstrukturen aus Abschn. 7.1 kann hier die Kanalbreite und Richtung nicht auch aus dem LEED-Muster ermittelt werden [214]. Es lässt sich nur feststellen, dass der Symmetrieabstand der Anordnung aus S- und Fe-Atomen in den obersten Lagen 12- bzw. 16-mal so groß ist wie bei Fe(110). Die Beugungsmuster bei axialer Gitterführung schneller Atome hängen hingegen fast ausschließlich vom Wechselwirkungspotential zwischen dem Projektil und der obersten S-Atomlage ab. Daher enthalten sie gegen-

Tab. 7.4: Breiten der Gitterführungskanäle von „(12×16)S/Fe(110)“. Gitterführungsrichtung (siehe Abb. 7.27), azimuthaler Einfallswinkel γ_{in} , Anstieg s der Regressionsgeraden aus Abb. 7.30 und ermittelte Breite d des Gitterführungskanals.

Richtung	γ_{in} (°)	s (°/Å)	d (Å)
$\langle 1\bar{1}0 \rangle$	0	$16,3 \pm 0,6$	$3,5 \pm 0,1$
„A“	$9 \pm 0,7$	$15,4 \pm 0,5$	$3,7 \pm 0,1$
„B“	$18 \pm 0,7$	$15,3 \pm 0,5$	$3,8 \pm 0,1$
„C“	$32 \pm 0,7$	$17,9 \pm 0,7$	$3,2 \pm 0,1$
„D“	$74 \pm 0,7$	$17,5 \pm 0,6$	$3,3 \pm 0,1$
„E“	$80 \pm 0,7$	$14,3 \pm 0,5$	$4,0 \pm 0,1$
$\langle 001 \rangle$	90	$9,6 \pm 0,6$	$6,0 \pm 0,4$

über dem LEED-Muster zusätzliche Informationen. Es bleibt nun das komplexe Problem, einen Strukturvorschlag zu erarbeiten, der sowohl mit einem (12×16)-LEED-Muster aus Abb. 7.25b im Einklang ist, als auch die beobachteten Gitterführungsrichtungen aus Abb. 7.27 sowie die ermittelten Kanalbreiten aus Tab. 7.4 aufweist.

Weissenrieder *et al.* konnten nach der Segregation von mehr als einer Monolage Schwefel auf Fe(110) mit STM eine quasi geordnete Struktur beobachten, bei der sich die S-Atome zu etwa gleichgroßen Parallelogrammen anordnen, welche entlang der $\langle 001 \rangle$ - bzw. $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ -Richtung orientiert sind [468]. Diese Struktur ist jedoch nicht symmetrisch bezüglich des Winkels γ_{in} zur $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - bzw. zur $\langle 001 \rangle$ -Richtung wie bei der vorliegenden „(12×16)S“-Struktur (siehe Abb. 7.27).

In der Literatur finden sich weitere Beispiele für komplexe Schwefel-Strukturen. Schwefel adsorbiert z.B. auf Re(0001) als $(2\sqrt{3} \times 2\sqrt{3})\text{R}30^\circ$ -Überstruktur [487]. Diese besteht aus einer Anordnung von Ringen aus jeweils sechs S-Atomen. Elementarer Schwefel bildet S_8 -Moleküle, in denen die S-Atome zu einem kronenförmigen Ring angeordnet sind, d.h. nur jeweils vier der acht S-Atome liegen in derselben Ebene. Bei Schichten aus mehr als einer Monolage Schwefel – wie im vorliegenden Fall – werden für die oberste Lage die Wechselwirkungen zwischen den S-Atomen untereinander eine größere Rolle spielen als die Wechselwirkung mit dem Fe(110)-Substrat. Daher liegen auch hier die Atome der obersten Lage nicht notwendigerweise in derselben Ebene. Bei der Segregation von mehr als einer Monolage Schwefel an die Fe(111)-Oberfläche lässt sich z.B. eine $(2\sqrt{3} \times 1)\text{R}30^\circ$ -Überstruktur beobachten, welche durch die wellenförmige Erhöhung von S-Atomketten der obersten Lage induziert wird [484]. Diese Struktur ist zusätzlich durch ein Muster dreieckiger Vertiefungen gegenzeichnet, die nicht zum LEED-Muster beitragen. Solch eine wellenförmige Erhöhung von S-

Atomketten wäre wegen der hohen Periodenlängen mit Beugung schneller Atome nicht feststellbar. Andererseits bilden die Atome der Struktur innerhalb einer Periode Gitterführungs Kanäle, deren Abstand aus den Beugungsmuster bei der Streuung schneller Atome bestimmbar ist, jedoch nicht ohne weiteres aus dem LEED-Bild abgeleitet werden kann.

Zusammenfassung: Bei Streuung von He-Atomen und H₂-Molekülen an der vorläufig mit „(12×16)S/Fe(110)“ bezeichneten Überstruktur zeigen sich für mehrere Gitterführungsrichtungen wohldefinierte Beugungsmuster. Die LEED-Muster und die Beugungsmuster bei der Streuung schneller Atome enthalten aufgrund der unterschiedlichen Sensitivität auf tiefere Atomlagen komplementäre Informationen. Die Erarbeitung eines Strukturvorschlags, welcher zu den aus dem Abstand der Beugungslinien ermittelten Breiten der Gitterführungs Kanäle korrespondiert und gleichzeitig das LEED-Muster erklärt, ist noch nicht abgeschlossen.

Kapitel 8

Zusammenfassung und Ausblick

8.1 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden die klassischen und quantenmechanischen Regenbögen in den Intensitätsverteilungen bei der streifenden Streuung von schnellen Atomen an atomar ebenen Oberflächen kristalliner Festkörper untersucht. Dazu wurden unterschiedliche Atomsorten mit kinetischen Energien im Bereich von keV unter einem Einfallswinkel von ca. 1° bezüglich der Oberfläche entlang niedrig indizierter Kristallrichtungen in der Oberfläche gestreut. Die Projektilatome werden dabei entlang dicht gepackter Atomketten der jeweiligen Kristallrichtung geführt, d.h. es kommt zu keinen binären Stößen zwischen Projektilatom und den Atomen der Oberfläche. Dieses Regime wird axiale Oberflächen-Gitterführung genannt. Die Projektilatome werden bei der Wechselwirkung mit den Atomketten aus der Einfallsebene heraus azimuthal abgelenkt. Die Streuverteilungen zeigen Intensitätsmaxima, die als klassische Regenbogenmaxima interpretiert werden. Die Winkelposition dieser Regenbögen hängt empfindlich vom Wechselwirkungspotential zwischen Projektilatom und Oberfläche ab. Der Vergleich zwischen den gemessenen Regenbogenwinkeln und den Ergebnissen einer klassischen Trajektorien-simulation erlaubt Rückschlüsse auf die Gültigkeit der Näherungen beim verwendeten Projektilatom-Oberfläche-Potential. Für leichte Atome und Moleküle zeigen sich in den Intensitätsverteilungen sogenannte überzählige Regenbögen. Bei geringeren Energien treten auch diskrete Bragg-Reflexe auf, deren Intensität durch die Winkelposition der überzähligen Regenbögen bestimmt wird. Diese Effekte lassen sich nur im Sinne von quantenmechanischer Beugung erklären. Ein solches Beugungsmuster wird Quanten-Regenbogen ge-

nannt. Da Beugungserscheinungen bei der Streuung von Atomen mit Projektilenergien im Bereich von keV zuvor weder beobachtet noch erwartet wurden, sind die Beugungseffekte in der vorliegenden Arbeit ausführlich studiert worden. Die Beugung schneller Atome erlaubt eine Bestimmung der Struktur der Oberfläche und der Form des Wechselwirkungspotentials zwischen Projektil und Oberfläche mit hoher Genauigkeit. Um die Beugung schneller Atome als neue Methode zur Untersuchung von Oberflächen zu etablieren, wurden in dieser Arbeit systematisch verschiedene bereits mit anderen Methoden analysierte Oberflächen studiert. Die wichtigsten Resultate sind im Folgenden zusammengefasst.

Zu Beginn dieser Arbeit wurden die klassischen Regenbögen bei der Streuung an unterschiedlichen Al-Flächen entlang verschiedener Gitterführungsrichtungen systematisch auf ihre Abhängigkeit von der kinetischen Energie senkrecht zur Oberfläche, von der Projektilenergie und von der Kernladung bzw. Sorte des Projektilatoms untersucht. Dabei zeigte sich, dass sich die klassischen Regenbogenwinkel bei Streuung von Edelgas-Atomen und Metall-Atomen mit ähnlicher Kernladungszahl umso stärker unterscheiden, je kleiner die Senkrechtenergie ist. Bei Streuung von Halogenid-Atomen sowie N-, O- und S-Atomen hängen die Regenbogenwinkel bei konstanter Senkrechtenergie von der Projektilenergie ab. Dies wird als eine Abhängigkeit des Potentials von der Geschwindigkeit der Projektile interpretiert. Mit Projektilatom-Oberfläche-Potentialen auf der Basis der Superposition von Paarpotentialen können die systematischen Unterschiede nicht erklärt werden. Die Wechselwirkung zwischen dem Projektilatom und dem quasifreien Elektronengas vor der Metalloberfläche muss bei der Konstruktion eines adäquaten Potentials berücksichtigt werden. Dieser zusätzliche Beitrag zum Gesamtpotential kann ein paar eV betragen und ist abstoßend für Edelgas-Atome und teilweise anziehend für reaktive Atome. Das Verhalten der ebenfalls untersuchten polaren Halbwertsbreiten der Intensitätsmaxima bei Streuung entlang hochindizierter Richtungen unterstützt diese Interpretation. Simulationen auf der Basis von Potentialen aus DFT-Rechnungen für das gesamte System von Projektilatom und Oberfläche können die gemessenen Regenbogenwinkel gut beschreiben. Damit wurde gezeigt, dass DFT-Potentiale am besten geeignet sind, die streifende Streuung schneller Atome an Metalloberflächen zu beschreiben.

Um zu zeigen, dass die unterschiedlichen Regenbogenwinkel auf die Wechselwirkung mit dem quasifreien Elektronengas vor einer Metalloberfläche zurückzuführen sind, wurde zum Vergleich die Streuung von Atomen an der Oberfläche des Isolators LiF untersucht. Es wurde ge-

zeigt, dass sich die Regenbogenwinkel bei der Streuung von Projektilen mit ähnlicher Kernladung nur wenig unterscheiden. Im Gegensatz zur Streuung an den Al-Flächen traten keine systematischen Abweichungen von der Beschreibung auf der Basis der Superposition von Paarpotentialen auf. Weiterhin wurde gezeigt, dass bei Ionenkristallen wie LiF die Ladung der Ionen der Oberfläche im Paarpotential berücksichtigt werden muss. Generalisierte Paarpotentiale sind hier keine adäquate Näherung. Die Simulationen auf der Basis der Superposition von Atom-Ion-HF-Paarpotentialen können die experimentellen Regenbogenwinkel in guter Näherung wiedergeben.

Entgegen den Erwartungen wurden bei der Streuung von leichten Atomen und Molekülen an LiF(001) Beugungsmuster beobachtet. Die folgenden Experimente konzentrierten sich auf die systematische Untersuchung dieser Beugungseffekte. Die schnellen Atomen zugeordnete De-Broglie-Wellenlänge ist ca. drei Größenordnungen kleiner als der Abstand der Atome im Kristallgitter. Jedoch ermöglicht die hohe Winkelauflösung in der Geometrie der streifenden Streuung eine Trennung diskreter Bragg-Maxima. Die Beugungsmuster werden durch kohärente Streuung der Projektile an den Atomketten der Kristall-Oberfläche hervorgerufen, die wie ein Beugungsgitter wirken. Der Abstand der Beugungslinien ist äquidistant und unabhängig vom Einfallswinkel. Die azimutalen Austrittswinkel der Beugungsstrahlen sind linear von der De-Broglie-Wellenlänge abhängig und entsprechen der Bragg-Bedingung.

Die minimale Halbwertsbreite der Beugungslinien ist direkt proportional zur Divergenz des einfallenden Atomstrahls. Die Beugungslinien haben das gleiche Profil, unabhängig von ihrer Ordnung und der Gitterführungsrichtung. Die Breite der Beugungslinien steigt mit der Projektilenergie und dem Einfallswinkel. Wird die Breite der Beugungslinien deutlich größer als deren Abstand zueinander, dann ergibt sich eine klassische Streuerverteilung. Es wurde gezeigt, dass bei Streuung von H-Atomen an LiF(001) die Wahrscheinlichkeit für einen Energieverlust des Projektils aufgrund elektronischer Anregungen mit der Projektilenergie bzw. des Einfallswinkels in gleicher Weise steigt wie der Anteil des inkohärenten Untergrunds. Die dominanten Dekohärenzmechanismen sind damit identifiziert.

Die relative Intensität der Beugungsordnungen ist bei gegebener De-Broglie-Wellenlänge bezüglich der Bewegung senkrecht zur Oberfläche unabhängig von der Projektilenergie und dem Einfallswinkel. Die relative Intensität einer jeden Beugungsordnung oszilliert unterschiedlich mit der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge. Die Oszillationen lassen sich in semiklassischer Näherung mit dem Modell einer sinusförmig korrigierten harten Wand gut beschreiben. Aus der Anpassung an die Mes-

sergebnisse lässt sich die Korrugation des effektiven Wechselwirkungspotentials bestimmen. Dabei muss eine Korrektur der Abweichungen aufgrund der Harte-Wand-Näherung berücksichtigt werden. Wenn keine diskreten Bragg-Reflexe aufgelöst werden können, dann ist deren unterschiedliche Intensität noch in Form von überzähligen Regenbögen erkennbar. Diese können mit einer semiklassischen Simulation ohne Berücksichtigung der Bragg-Bedingung beschrieben werden.

Alle gemessenen Beugungsmuster für Streuung einer bestimmten Projektionsart entlang einer bestimmten Gitterführungsrichtung lassen sich als Funktion der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge und des Ablenkungswinkels in einer Beugungskarte darstellen. Die Beugungskarte ist ein Fingerabdruck des zugrundeliegenden effektiven Wechselwirkungspotentials. Die Beugungskarten für Streuung schneller He-Atome an LiF(001) lassen sich mit dem Modell einer sinusförmigen harten Wand gut beschreiben. Die Näherung stimmt gut mit dem Ergebnis einer Wellenpaket-Rechnung überein. Die Beugungskarten hängen empfindlich von der Korrugation des effektiven Wechselwirkungspotentials ab.

Das He-LiF(001) Potential wurde bisher noch nicht experimentell im Energiebereich 0,1 bis 5 eV untersucht. Die Extrapolation von He-LiF(001)-Potentialen aus dem Bereich thermischer Energien zu höheren Energien ergibt kein zur Beschreibung der Beugungsmuster schneller He-Atome geeignetes Potential. Ein Potential aus HF-Paarpotentialen ist eine bessere Näherung. Die aus verschiedenen sogenannten Ab-initio-Rechnungen stammenden He-LiF(001)-DFT-Potentiale weichen bei den hier relevanten Energien voneinander ab. Nur eines der drei betrachteten DFT-Potentiale kann die gemessenen Beugungsmuster im gesamten Energiebereich wiedergeben. Auf diese Weise erlaubt der Vergleich mit den Beugungsmustern schneller Atome eine Bewertung der Qualität von DFT-Rechnungen.

Die Beugungsmuster bei der Streuung schneller He-Atome entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung von LiF(001) hängen vom Rumpling δz der Oberfläche ab. Die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten ergibt sich mit $\delta z = (0,047 \pm 0,015) \text{ \AA}$. Dieses Ergebnis stimmt mit den theoretischen Werten aus DFT-Rechnungen und dem mittels LEED bestimmten Rumpling von Vogt *et al.* [268] gut überein. Die von Laramore *et al.* [267], Roberts *et al.* [14] sowie Garcia [181, 187] experimentell abgeleiteten Werte sind mit den Daten aus der Beugung schneller Atome nicht vereinbar.

Um zu demonstrieren, dass es sich bei der Beugung schneller Atome um ein allgemeines Prinzip handelt, wurde mit MgO(001) eine weitere Isolator-Oberfläche untersucht. Es wurde gezeigt, dass auch hier die Winkelposition der Beugungsreflexe die Bragg-Bedingung erfüllt. Der

Übergang von Beugung zu klassischer Streuung vollzieht sich bei der Streuung von He-Atomen an MgO(001) bei geringeren Energien als bei LiF(001). Für die Dekohärenz sind eher elektronische Anregungsprozesse als die thermischen Schwingungen der Atome der Oberfläche verantwortlich.

Die Beschreibung des He-MgO(001)-Potentials durch eine Superposition von He-Mg²⁺- und He-O²⁻-HF-Paarpotentialen ist eine bessere Näherung als ein Potential auf der Basis von Paarpotentialen für neutrale Atome. Das He-MgO(001)-DFT-Potential zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Es wurde gezeigt, dass die Van-der-Waals-Kräfte im relevanten Energiebereich vernachlässigbar sind. Der aus der Beugung schneller Atome ermittelte Rumpling-Wert von $\delta z = (0,03 \pm 0,03) \text{ \AA}$ stimmt mit DFT-Rechnungen und anderen Experimenten [334, 375, 388] gut überein. Wie bei LiF(001) können bei der Streuung an MgO(001) überzählige Regenbögen auch dann beobachtet werden, wenn die Kohärenz für Bragg-Reflexe nicht mehr ausreicht. Eine semiklassische Simulation, in der nur die Interferenz zwischen unterschiedlichen Trajektorien mit gleichem Ablenkwinkel berücksichtigt wird, kann die überzähligen Regenbögen beschreiben.

Mit dem He-MgO(001)-Potential aus der DFT-Rechnung lassen sich auch die klassischen Regenbögen bis zu Senkrechtenenergien $E_{\perp} < 6 \text{ eV}$ gut wiedergeben. Die Näherung des Potentials durch eine sinusförmige harte Wand ist zur Beschreibung der Streuung entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Richtung bis $E_{\perp} < 1,5 \text{ eV}$ ausreichend genau, wenn die Korrektur der Abweichung durch die Harte-Wand-Näherung berücksichtigt wird. Für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung ist die Näherung bis $E_{\perp} < 0,9 \text{ eV}$ gültig. Die klassischen Regenbogenwinkel bei der Streuung von Ne-Atomen an MgO(001) lassen sich mit dem Potential aus Ne-Mg²⁺- und Ne-O²⁻-HF-Paarpotentialen deutlich besser beschreiben, als mit Paarpotentialen für neutrale Atome.

Um festzustellen, ob die Bandlücke des Isolators eine notwendige Bedingung für die Beugung schneller Atome ist, wurde mit Ni(110) eine Metalloberfläche untersucht. Auch hier waren Beugungsmaxima zu beobachten. Damit wurde gezeigt, dass Beugung schneller Atome prinzipiell bei allen Materialklassen möglich sein sollte. Die aus der Intensität der Beugungsmaxima bestimmte Korrugation des He-Ni(110)-Potentials ist näherungsweise unabhängig von der Senkrechtenenergie in Übereinstimmung mit den Beobachtungen bei der Streuung thermischer He-Atome. Der hier abgeleitete Wert ist jedoch etwas höher. Potentiale aus der Superposition von He-Ni-Paarpotentialen sind mit den Beugungsmustern nicht vereinbar.

Bei der Beugung schneller Atome an Metallen sind Dekohärenzpro-

zesse stärker ausgeprägt als bei Isolatoren. Dieser Unterschied ist nicht auf die thermischen Auslenkungen der Atome der Oberfläche zurückzuführen. Die verringerte Kohärenz kann mit elektronischen Anregungen bei binären Stößen zwischen dem Projektil und den Elektronen des Metalls erklärt werden. Es wurde gezeigt, dass eine Adsorbatschicht die Kohärenz erhöhen kann.

Die klassischen Regenbogenwinkel bei der Streuung von He-Atomen an Ni(110) können mit dem HF-Potential beschrieben werden. Für Senkrechtereignen unter 3 eV ist die Superposition von Paarpotentialen in diesem Fall jedoch keine gute Näherung. Die Streuung von Ne-Atomen an Ni(110) wird im gesamten untersuchten Energiebereich vom HF-Potential gut beschrieben. Das Ar-Ni(110)-Potential kann nicht durch eine Superposition von HF- oder DFT-Paarpotentialen beschrieben werden. Die Anpassung eines empirischen Potentials ist aber möglich.

Um die Grenzen der Beugung schneller Atome weiter auszutesten, wurde studiert, ob sich die Methode auch zur Analyse der Überstrukturen adsorbatbedeckter Oberflächen eignet. Dazu wurde eine $c(1 \times 3)$ S- und eine $c(2 \times 2)$ O-Überstruktur auf Fe(110) präpariert und mit Beugung schneller Atome untersucht. Aus den aus dem Abstand der Beugungslinien abgeleiteten Breiten der Gitterführungs Kanäle konnte auf eine $c(1 \times 3)$ S- bzw. eine $c(2 \times 2)$ O-Überstruktur geschlossen werden. Damit wurde gezeigt, dass die laterale Anordnung der Adsorbat-Atome aus den Beugungsmustern abgeleitet werden kann.

Der gesamte experimentelle Datensatz aus der Beugung schneller ^3He -Atome an $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ war mit dem Modell einer sinusförmigen harten Wand mit einer linear von der Senkrechtereignie abhängenden Korrugation gut zu beschreiben. Die Korrugation des $\text{He}-c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$ -Potentials ist vom Abstand h der O-Adsorbat-Atome zur obersten Lage der Fe(110)-Oberfläche abhängig. Daher kann h aus der experimentell bestimmten Korrugation abgeleitet werden. Es wurde ein Abstand von $h = (0,9 \pm 0,2) \text{ \AA}$ ermittelt. Dieser Wert stimmt mit dem Ergebnis von DFT-Rechnungen gut überein. Die Genauigkeit wird durch die Ungenauigkeit des verwendeten Wechselwirkungspotentials begrenzt.

Bei der Streuung von He^+ -Ionen an $c(1 \times 3)\text{S}/\text{Fe}(110)$ treten Interferenzmuster in Form von überzähligen Regenbögen auf, obwohl die Neutralisation der Ionen vor der Oberfläche ein effizienter Dekohärenzprozess ist. Bei der Streuung von Ne-Atomen sind die überzähligen Regenbögen noch bis 4 keV Projektilenergie auflösbar. Anhand einer weiteren S-Überstruktur auf Fe(110) wurde demonstriert, dass die LEED-Muster und die Beugungsmuster bei der Streuung schneller

Atome komplementäre Informationen enthalten.

8.2 Ausblick

Im Rahmen eines bereits bewilligten Projekts der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) sollen die Beugungsmuster bei der Streuung schneller Atome an Oberflächen energieaufgelöst aufgenommen werden. Dazu soll die ortsauflösende Detektion mit einer Flugzeit-Messung kombiniert werden. Es wird erwartet, dass bei Selektion der elastisch gestreuten Projektile der inkohärente Untergrund in den Beugungsmustern unterdrückt werden kann. Möglicherweise sind dann auch in scheinbar klassischen Streuverteilungen Beugungseffekte zu identifizieren, die sonst von inkohärenten Ereignissen überdeckt werden. Das entspricht der Unterdrückung der inelastisch gestreuten Elektronen durch die negativ vorgespannten Drahtgitter in einer LEED-Apparatur.

Des Weiteren sollen die beim Streuprozess emittierten Elektronen koinzident nachgewiesen werden, d.h. jedem registrierten Ereignis in der Intensitätsverteilung der Projektile wird ein Energieverlust und die Anzahl der beim Streuprozess emittierten Elektronen zugeordnet. Dies wird es erlauben, die Beugungsmuster und deren Kohärenzgrad in direkten Bezug zu den Anregungsmechanismen bei der Wechselwirkung mit dem Festkörper zu setzen. Es ist z.B. denkbar, dass Projektile, die bei der Streuung an einem Isolator aufgrund der Anregung von Exzitonen einen wohldefinierten Energieverlust erleiden, dennoch kohärent streuen. Projektile, die aufgrund der Anregung von Elektronen einen statistisch verteilten Energieverlust erleiden, sollten hingegen kein Beugungsmuster hervorrufen können. Andererseits könnte es sein, dass bei der Streuung an Metalloberflächen alle Projektile aufgrund der Mittelung über viele Stöße mit Elektronen einen ähnlichen Energieverlust erleiden, sodass ausreichend Kohärenz erhalten bleibt. Der Kohärenzgrad aus den Beugungsmustern sollte dann mit der Breite der Verteilung des Energieverlusts in Zusammenhang stehen. Das Aufbringen einer Adsorbatschicht auf die Metalloberfläche sollte die Stöße zwischen dem Projektil und den Elektronen des Metalls reduzieren. Dies könnte den mittleren Energieverlust der Projektile und die Breite der entsprechenden Verteilung verringern. Das würde die im Experiment beobachtete Erhöhung der Kohärenz im Vergleich zur unbedeckten Metalloberfläche erklären. Solche Szenarien sollten durch die Kombination der ortsauflösenden Detektion mit einer Flugzeit-Messung und dem koinzidenten Nachweis der Elektronen aufzuklären sein.

Um das Studium der Dekohärenz-Effekte bei der Beugung schneller Atome an Metalloberflächen fortzuführen, sind Messungen an mög-

lichst offenen Oberflächen wie z.B. Ag(110) oder rekonstruierten Oberflächen wie z.B. $(1 \times 2)\text{Au}(110)$ geplant. Nur in diesen Fällen weist das Wechselwirkungspotential zwischen He-Atom und Metalloberfläche eine ausreichend hohe Korrugation auf, um die Projektile auch in höhere Beugungsordnungen abzulenken.

Es wird derzeit mit KCl(001) eine weitere Isolator-Oberfläche mit Beugung schneller Atome untersucht. Der Vergleich der experimentellen Ergebnissen mit Simulationen auf Basis von DFT-Potentialen soll dabei als Test bzw. Bestätigung der DFT-Rechnungen dienen. Ein weiterer interessanter Punkt ist dabei das Studium der Beugung von H_2 -Molekülen, die möglicherweise aufgrund einer vom Winkel des Moleküls zur Oberfläche abhängigen Polarisierung im Feld der Ionen der Oberfläche bei der Streuung entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung keine überzähligen Regenbögen zeigen.

Für zukünftige Experimente wurde ein neuer Targethalter beschafft, der es erlaubt, die Oberfläche zu kühlen. Das ermöglicht die Präparation von Adsorbat-Überstrukturen, die sich nur bei tiefen Temperaturen ausbilden. Bei Erhöhung der Temperatur der Oberfläche zeigte sich ein Anwachsen des inkohärenten Untergrunds in den Beugungsmustern. Bei Kühlung sollten die Beugungsmaxima daher besser zu trennen sein. Es ist geplant, den Kohärenzgrad als Funktion der Temperatur zu bestimmen, um den Einfluss der thermischen Auslenkungen der Atome der Oberfläche zu studieren und mit der Theorie [28] zu vergleichen.

Die Beugung schneller Atome ist bei der Analyse von Strukturen anwendbar, die bei Wechselwirkung mit Elektronen zerstört oder umstrukturiert werden. Es ist geplant, diese Eigenschaft experimentell zu demonstrieren. Dazu könnten z.B. H_2O -Moleküle auf NaCl(001) oder Ru(0001) adsorbiert werden. Deren Anordnung ändert sich während der LEED-Experimente [459, 461]. Diese Änderung sollte sich in den Beugungsmustern bei Streuung schneller Atome widerspiegeln, sobald die Oberfläche mit Elektronen bestrahlt wird.

Eine mögliche Anwendung für die Beugung schneller Atome ist die Untersuchung von geordneten Strukturen aus organischen Molekülen auf Oberflächen, denn solche Strukturen reagieren ebenfalls sehr sensibel auf Bestrahlung mit Elektronen. Zunächst sollten dafür bekannte Überstrukturen von einfachen organischen Molekülen präpariert werden, um an ihnen die Anwendbarkeit der Methode zu demonstrieren.

Es hat sich gezeigt, dass die Beugung schneller Atome umso besser funktioniert, je komplexer die Oberfläche ist. Um eine Strategie zur Ableitung von Strukturmodellen aus den entsprechenden Beugungsmustern zu erarbeiten, sollten zunächst bekannte komplexe Überstrukturen untersucht werden. Dabei können auch die Unterschiede zu den

Informationen aus den LEED-Mustern weiter herausgearbeitet werden.

Experimente zur Beugung schneller Atome an dünnen SiO_2 -Filmen auf Mo(112) ergaben sehr ausgeprägte Beugungsmuster, die zur Entscheidung zwischen zwei verschiedenen Strukturvorschlägen beitragen und die Genauigkeit der DFT-Rechnungen bestätigen konnten [488]. Die Untersuchung der Beugung an dünnen Filmen soll unter anderem mit $\text{TiO}_2/\text{Mo}(112)$ fortgesetzt werden.

Die an $\text{LiF}(001)$ gebeugten He-Strahlen sind kaum breiter als der einfallende Strahl. Darum könnte man $\text{LiF}(001)$ -Oberflächen als Strahlteiler und Spiegel für schnelle He-Atome verwenden. Eine Strahlführung ähnlich der in einem Interferometer wäre realisierbar.

Langfristig ist vorgesehen, einen kompakten experimentellen Aufbau für Beugung schneller Atome zu entwickeln. Dazu soll der Ionenbeschleuniger durch eine kompakte Quelle für He^+ -Ionen mit Energien im Bereich von 100 eV bis 2 keV ersetzt werden. Der relativ teure ortsaufauflösende Detektor könnte auch durch einen Lumineszenzschirm mit einer CCD-Kamera hinter den Mikrokanalplatten realisiert werden. Eine weitere preiswertere Alternative wäre es, den Kreis elastisch gestreuter Atome (siehe z.B. Abb. 2.15) mit einem Channeltron-Detektor entlangzufahren. Zur Messung der Oszillation der Intensität der nullten Beugungsordnung als Funktion der Senkrecht-de-Broglie-Wellenlänge (wie z.B. in Abb. 5.35) bräuchte der Channeltron-Detektor nicht einmal bewegt werden. Ein solcher Aufbau könnte mit endlichem Aufwand und überschaubaren Kosten nachgebaut werden und wäre ein weiterer Schritt zur Etablierung der Beugung schneller Atome als weitere Oberflächen-Analysemethode neben LEED, RHEED und HAS.

Literaturverzeichnis

- [1] FEYNMAN, R. P. ; LEIGHTON, R. B. ; SANDS, M. ; (Hrsg.): *The Feynman Lectures on Physics: 2. Bd.* . Benjamin-Cummings, 2005. – ISBN-13: 9780805390476
- [2] BROGLIE, L. de: Waves and Quanta. In: *Comptes rendus* 177 (1923), S. 507
- [3] BROGLIE, L. de: Waves and Quanta. In: *Nature* 112 (1923), S. 540. – [Link](#)
- [4] DAVISSON, C. ; GERMER, L. H.: Diffraction of Electrons by a Crystal of Nickel. In: *Phys. Rev.* 30 (1927), S. 705. – [Link](#)
- [5] DAVISSON, C. ; GERMER, L. H.: The Scattering of Electrons by a Single Crystal of Nickel. In: *Nature* 119 (1927), S. 558. – [Link](#)
- [6] ESTERMANN, I. ; STERN, O.: Beugung von Molekularstrahlen. In: *Zeitschrift für Physik* 61 (1930), S. 95. – [Link](#)
- [7] ARNDT, M. ; NAIRZ, O. ; VOS-ANDREAE, J. ; KELLER, C. ; ZOUW, G. van d. ; ZEILINGER, A.: Wave-particle duality of C60 molecules. In: *Nature* 401 (1999), S. 680. – [Link](#)
- [8] HEINZ, K.: Structural analysis of surfaces by LEED. In: *Progress in Surface Science* 27 (1988), S. 239. – [Link](#)
- [9] VAN HOVE, M.A. ; MORITZ, W. ; OVER, H. ; ROUS, P.J. ; WANDER, A. ; BARBIERI, A. ; MATERER, N. ; STARKE, U. ; SOMORJAI, G.A.: Automated determination of complex surface structures by LEED. In: *Surface Science Reports* 19 (1993), S. 191. – [Link](#)
- [10] WATSON, P. R. ; A., Van Hove M. ; K., Hermann: Atlas of Surface Structures Based on the NIST Surface Structure Database. In: *J. Phys. Chem. Ref. Data* Monograph No. 5 (1994), S. 1. – [Link](#)
- [11] BINNIG, G. ; ROHRER, H. ; GERBER, Ch. ; WEIBEL, E.: Surface Studies by Scanning Tunneling Microscopy. In: *Phys. Rev. Lett.* 49 (1982), S. 57. – [Link](#)
- [12] OHTANI, H. ; KAO, C. T. ; VAN HOVE, M. A. ; SOMORJAI, G. A.: A tabulation and classification of the structures of clean solid surfaces and of adsorbed atomic and molecular monolayers as determined from low energy electron diffraction patterns. In: *Progress in Surface Science* 23 (1986), S. 155. – [Link](#)

- [13] VOGT, J. ; WEISS, H.: The structure of NaCl(100) and KCl(100) single crystal surfaces: a tensor low energy electron diffraction analysis. In: *Surface Science* 491 (2001), S. 155. – [Link](#)
- [14] ROBERTS, J. G. ; VAN HOVE, M. A. ; SOMORJAI, G. A.: Surface structural analysis of LiF(1 0 0) thin films grown on Pt(1 1 1). In: *Surface Science* 518 (2002), S. 49. – [Link](#)
- [15] TOENNIES, J.: Scattering of molecular beams from surfaces. In: *Applied Physics A* 3 (1974), S. 91. – [Link](#)
- [16] HOINKES, H.: The physical interaction potential of gas atoms with single-crystal surfaces, determined from gas-surface diffraction experiments. In: *Rev. Mod. Phys.* 52 (1980), S. 933. – [Link](#)
- [17] ENGEL, T. ; RIEDER, K. H.: Structural studies of surfaces with atomic and molecular beam diffraction. In: *Springer Tracts in Modern Physics* 91 (1982), S. 55. – [Link](#)
- [18] CARDILLO, Mark J.: Helium diffraction as a probe of surface topography. In: *Faraday Discuss. Chem. Soc.* 80 (1985), S. 17. – [Link](#)
- [19] HULPKE, E. ; CELLI, V. ; RIEDER, K. H. ; ETAL. ; HULPKE, E. (Hrsg.): *Helium Atom Scattering from Surfaces*. Springer-Verlag, 1992
- [20] FARIAS, D. ; RIEDER, K.-H.: Atomic beam diffraction from solid surfaces. In: *Reports on Progress in Physics* 61 (1998), S. 1575. – [Link](#)
- [21] WINTER, H.: Collisions of atoms and ions with surfaces under grazing incidence. In: *Physics Reports* 367 (2002), S. 387. – [Link](#)
- [22] NIEHUS, H. ; HEILAND, W. ; TAGLAUER, E.: Low-energy ion scattering at surfaces. In: *Surface Science Reports* 17 (1993), S. 213. – [Link](#)
- [23] ECKSTEIN, W.: *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*. Springer, 1991
- [24] SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Diffraction of Fast Atomic Projectiles during Grazing Scattering from a LiF(001) Surface. In: *Phys. Rev. Lett.* 98 (2007), S. 016103. – [Link](#)
- [25] SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Supernumerary Rainbows in the Angular Distribution of Scattered Projectiles for Grazing Collisions of Fast Atoms with a LiF(001) Surface. In: *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008), S. 097602. – [Link](#)
- [26] ROUSSEAU, P. ; KHEMLICHE, H. ; BORISOV, A. G. ; RONCIN, P.: Quantum Scattering of Fast Atoms and Molecules on Surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 98 (2007), S. 016104. – [Link](#)
- [27] ROUSSEAU, P. ; KHEMLICHE, H. ; BUNDALESKI, N. ; SOULISSE, P. ; MOMENI, A. ; RONCIN, P.: Surface analysis with grazing incidence fast atom diffraction (GIFAD). In: *Journal of Physics: Conference Series* 133 (2008), S. 012013. – [Link](#)

- [28] MANSON, J. R. ; KHEMLICHE, H. ; RONCIN, P.: Theory of grazing incidence diffraction of fast atoms and molecules from surfaces. In: *Phys. Rev. B* 78 (2008), S. 155408. – [Link](#)
- [29] BUNDALESKI, N. ; KHEMLICHE, H. ; SOULISSE, P. ; RONCIN, P.: Grazing Incidence Diffraction of keV Helium Atoms on a Ag(110) Surface. In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), S. 177601. – [Link](#)
- [30] BUSCH, M. ; SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Fast atom diffraction at metal surface. In: *Surface Science* 603 (2009), S. L23. – [Link](#)
- [31] SCHÜLLER, A. ; BUSCH, M. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Fast Atom Diffraction from Superstructures on a Fe(110) Surface. In: *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009), S. 017602. – [Link](#)
- [32] SCHÜLLER, A. ; BUSCH, M. ; SEIFERT, J. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H. ; GARTNER, K.: Superstructures of oxygen and sulphur on a Fe(110) surface via fast atom diffraction. In: *Phys. Rev. B* 79 (2009), S. 235425. – [Link](#)
- [33] KHEMLICHE, H. ; BUNDALESKI, N. ; SOULISSE, P. ; RONCIN, P.: Electron excitations in grazing diffraction of fast He on a Ag(1 1 0) surface. A tribute to Hannspeter Winter. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 267 (2009), S. 620. – [Link](#)
- [34] RENAUD, G.: Oxide surfaces and metal/oxide interfaces studied by grazing incidence X-ray scattering. In: *Surface Science Reports* 32 (1998), S. 5. – [Link](#)
- [35] MAHAN, J. E. ; GEIB, K. M. ; ROBINSON, G. Y. ; LONG, R. G.: A review of the geometrical fundamentals of reflection high-energy electron diffraction with application to silicon surfaces. In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 8 (1990), S. 3692. – [Link](#)
- [36] KHEMLICHE, H. ; ROUSSEAU, P. ; RONCIN, P. ; ETGENS, V. H. ; FINOCCHI, F.: Grazing incidence fast atom diffraction: An innovative approach to surface structure analysis. In: *Appl. Phys. Lett.* 95 (2009), S. 151901. – [Link](#)
- [37] MOMENI, Anouchah ; SOULISSE, Pierre ; ROUSSEAU, Patrick ; KHEMLICHE, Hocine ; RONCIN, Philippe: Grazing Incidence Fast Atom Diffraction (GI-FAD): Doing RHEED with Atoms. In: *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology* 8 (2010), S. 101. – [Link](#)
- [38] PAWIN, G. ; WONG, K. L. ; KWON, Ki-Young ; BARTELS, L.: A Homomolecular Porous Network at a Cu(111) Surface. In: *Science* 313 (2006), S. 961. – [Link](#)
- [39] OISON, V. ; KOUDIA, M. ; ABEL, M. ; PORTE, L.: Influence of stress on hydrogen-bond formation in a halogenated phthalocyanine network. In: *Phys. Rev. B* 75 (2007), S. 035428. – [Link](#)
- [40] KHEMLICHE, H. ; RONCIN, P. ; P., Rousseau: Device and method of characterizing surfaces. In: *Int. Pat.* WO/2008/003865 (2008), S. IPC G01N 23/201. – [Link](#)

- [41] HORIO, Y. ; SATOH, S.: Observation of triangular terraces and triangular craters of CaF₂ film on Si(1 1 1) substrate. In: *Applied Surface Science* 190 (2002), S. 80. – [Link](#)
- [42] NASTASI, M. ; MAYER, J. W. ; HIRVONEN, J. K. ; (Hrsg.): *Ion-solid interactions: fundamentals and applications*. Bd. . Cambridge University Press, 1996. – ISBN-13: 978-0521373760
- [43] MOLIERE, G.: Theorie der Streuung schneller geladener Teilchen I. Einzelstreuung am abgeschirmten Coulomb-Feld. In: *Z. Naturforsch.* 2a (1947), S. 133
- [44] FIRSOV, O.: Calculation of the interaction potential of Atoms. In: *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 33 (1957), S. 696
- [45] LINDHARD, J. ; SCHARFF, M. ; E., Schott H.: Range concepts and heavy ion ranges (notes on atomic collisions, II). In: *Kong. Danske Vid. Selsk.* 33 Nr.14 (1963), S. 1
- [46] POELSEMA, B. ; VERHEY, L. K. ; BOERS, A. L.: Study of low energy noble gas ion reflection from monocrystalline surfaces; Influence of thermal vibrations of the surface atoms : IV. Possibilities for the estimation of the actual ion-atom interaction potential. In: *Surface Science* 64 (1977), S. 554. – [Link](#)
- [47] OVERBURY, S. H. ; HUNTLEY, D. R.: Determination of the scattering potential for low energy alkali-metal ions from a Mo(001) surface. In: *Phys. Rev. B* 32 (1985), S. 6278. – [Link](#)
- [48] WILLIAMS, R. S. ; RABALAIS, W. (Hrsg.): *Low Energy Ion-Surface Interactions*. Wiley & Sons, 1994
- [49] O'CONNOR, D. J. ; BIRSACK, J. P.: Comparison of theoretical and empirical interatomic potentials. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 15 (1986), S. 14. – [Link](#)
- [50] O'CONNOR, D. J. ; MACDONALD, R. J.: A correction factor to the interatomic potential screening function for use in computer simulations. In: *Radiation Effects* 34 (1977), S. 247. – [Link](#)
- [51] ABRAHAMSON, Adolf A. ; HATCHER, Robert D. ; VINEYARD, George H.: Interatomic Repulsive Potentials at Very Small and Intermediate Separations. In: *Phys. Rev.* 121 (1961), S. 159. – [Link](#)
- [52] ABRAHAMSON, A.: Born-Mayer-Type Interatomic Potential for Neutral Ground-State Atoms with Z=2 to Z=105. In: *Phys. Rev.* 178 (1969), S. 76. – [Link](#)
- [53] WEDEPOHL, P. T.: The atomic interaction potential. In: *Radiation Effects* 1 (1969), Nr. 2, S. 77. – [Link](#)
- [54] GÄRTNER, K. ; HEHL, K.: Theoretical description of elastic atom - atom scattering. In: *Physica Status Solidi (b)* 94 (1979), S. 231. – [Link](#)

- [55] GÄRTNER, K.: *persönliche Mitteilung*. . – Friedrich-Schiller-Universität Jena
- [56] CLEMENTI, E. ; ROETTI, C.: Roothaan-Hartree-Fock atomic wavefunctions: Basis functions and their coefficients for ground and certain excited states of neutral and ionized atoms, $Z \leq 54$. In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 14 (1974), S. 177. – [Link](#)
- [57] ZIEGLER, J. F. ; BIRSACK, J. P. ; LITTMARK, U.: *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon, New York, 1990
- [58] WINTER, H.: Scattering of atoms and ions from insulator surfaces. In: *Progress in Surface Science* 63 (2000), S. 177. – [Link](#)
- [59] ROBIN, A. ; JENSEN, J. ; OSTERMANN, D. ; HEILAND, W.: Surface channeling of 1 and 10 keV nitrogen ions on a Pt(1 1 0)(1x2) surface. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 193 (2002), S. 568. – [Link](#)
- [60] LUI, K. M. ; FANG, Z. L. ; LAU, W. M. ; RABALAIS, J. W.: Computer simulations of hyperchanneling of low energy ions in semichannels of Pt(111)-(1x1) surface. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 182 (2001), S. 200. – [Link](#)
- [61] AUTH, C. ; MERTENS, A. ; WINTER, H. ; BORISOV, A.: Threshold in the Stopping of Slow Protons Scattered from the Surface of a Wide-Band-Gap Insulator. In: *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998), S. 4831. – [Link](#)
- [62] MERTENS, A. ; WINTER, H.: Energy Transfer from Fast Atomic Projectiles to a Crystal Lattice under Channeling Conditions. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), S. 2825. – [Link](#)
- [63] AHLRICHS, R. ; BOHM, H. J. ; BRODE, S. ; TANG, K. T. ; TOENNIES, J. P.: Interaction potentials for alkali ion–rare gas and halogen ion–rare gas systems. In: *J. Chem. Phys.* 88 (1988), S. 6290. – [Link](#)
- [64] TIWALD, P. ; LEMELL, C.: *persönliche Mitteilung*. . – Technische Universität Wien, AG Burgdörfer
- [65] GONZE, X. ; BEUKEN, J. M. ; CARACAS, R. ; DETRAUX, F. ; FUCHS, M. ; RIGNANESE, G. M. ; SINDIC, L. ; VERSTRAETE, M. ; ZERAH, G. ; JOLLET, F. ; TORRENT, M. ; ROY, A. ; MIKAMI, M. ; GHOSEZ, Ph. ; RATY, J. Y. ; ALLAN, D. C.: First-principles computation of material properties: the ABINIT software project. In: *Computational Materials Science* 25 (2002), S. 478. – [Link](#)
- [66] ESBJERG, N. ; NORSKOV, J. K.: Dependence of the He-Scattering Potential at Surfaces on the Surface-Electron-Density Profile. In: *Phys. Rev. Lett.* 45 (1980), S. 807. – [Link](#)
- [67] MANNINEN, M. ; NORSKOV, J. K. ; PUSKA, M. J. ; UMRIGAR, Cyrus: Repulsive interaction of the helium atom with a metal surface. In: *Phys. Rev. B* 29 (1984), S. 2314. – [Link](#)

- [68] RIEDER, K. H. ; BAUMBERGER, M. ; STOCKER, W.: Surface-charge-density relaxation of Ni(113). In: *Phys. Rev. Lett.* 55 (1985), S. 390. – [Link](#)
- [69] RIEDER, K. H.: Experimental investigation of the energy dependence and evidence for the softness of the He/Ni(110) potential. In: *Surface Science* 117 (1982), S. 13. – [Link](#)
- [70] RIEDER, K. H.: Determination of Surface Structures using He-Diffraction. In: *Physica Scripta* T1 (1982), S. 93. – [Link](#)
- [71] RIEDER, K. H. ; GARCIA, N.: Energy Dependence and Softness of the Potential for He Scattering from Ni(110). In: *Phys. Rev. Lett.* 49 (1982), S. 43. – [Link](#)
- [72] RIEDER, K. H. ; STOCKER, W.: Scattering of He, Ne, Ar, H₂, and N₂ from Cu(110). In: *Phys. Rev. B* 31 (1985), S. 3392. – [Link](#)
- [73] RIEDER, K. H. ; STOCKER, W.: Observation of Pronounced Neon Diffraction from Low-Index Metal Surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 52 (1984), S. 352. – [Link](#)
- [74] RIEDER, K. H. ; STOCKER, W.: The He/Pd (110) interaction potential. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 16 (1983), S. L783. – [Link](#)
- [75] ENGEL, T. ; RIEDER, K. H.: A molecular-beam diffraction study of H₂ adsorption on Ni(110). In: *Surface Science* 109 (1981), S. 140. – [Link](#)
- [76] KIRSTEN, E. ; PARSCHAU, G. ; RIEDER, K. H.: Resonant scattering of He-atoms from missing-row reconstructed Pt(110)1x2: comparison of theory and experiment. In: *Surface Science* 236 (1990), S. L365. – [Link](#)
- [77] KIRSTEN, E. ; RIEDER, K. H.: Determination of the full He-Pt(110)(1x2) interaction potential from analyses of helium diffraction intensities. In: *Surface Science Letters* 222 (1989), S. L837. – [Link](#)
- [78] LAHEE, A.M. ; ALLISON, W. ; WILLIS, R.F. ; RIEDER, K.H.: He diffraction studies of Pt(110) (1x2). In: *Surface Science* 126 (1983), S. 654. – [Link](#)
- [79] PARSCHAU, G. ; KIRSTEN, E. ; BISCHOF, A. ; RIEDER, K. H.: Diffraction of He and Ne and selective adsorption of He on Rh(110). In: *Phys. Rev. B* 40 (1989), S. 6012. – [Link](#)
- [80] GARCIA, N. ; BARKER, J. A. ; BATRA, I. P.: Helium scattering from metal surfaces: potential determination and crystallography. In: *Solid State Communications* 47 (1983), S. 485. – [Link](#)
- [81] GODBY, R. W. ; GARCIA, N.: Breakdown of atomic superposition for the helium scattering potential of c(2x2) oxygen on nickel (001). In: *Surface Science* 163 (1985), S. L681. – [Link](#)
- [82] HAMANN, D. R.: Surface Charge Densities and Atom Diffraction. In: *Phys. Rev. Lett.* 46 (1981), S. 1227. – [Link](#)

- [83] SALANON, B. ; ARMAND, G. ; PERREAU, J. ; LAPUJOULADE, J.: Diffraction of He from Cu(110) in the 20-240 meV range; comparison with a realistic model potential. In: *Surface Science* 127 (1983), S. 135. – [Link](#)
- [84] LUNTZ, A. ; MATTERA, L. ; ROCCA, M. ; TERRENI, S. ; TOMMASINI, F. ; VALBUSA, U.: Study of the Ag(110) surface by He diffraction. In: *Surface Science* 126 (1983), S. 695. – [Link](#)
- [85] SCHINKE, R. ; LUNTZ, A.C.: Experimental He-Ag(110) interaction potential. In: *Surface Science* 124 (1983), S. L60. – [Link](#)
- [86] BAUMBERGER, M. ; RIEDER, K.H. ; STOCKER, W.: Analyses of Ne-diffraction data from transition-metal surfaces based on charge-density calculations. In: *Surface Science* 167 (1986), S. L203. – [Link](#)
- [87] PETERSEN, M. ; WILKE, S. ; RUGGERONE, P. ; KOHLER, B. ; SCHEFFLER, M.: Scattering of Rare-Gas Atoms at a Metal Surface: Evidence of Anticorrugation of the Helium-Atom Potential Energy Surface and the Surface Electron Density. In: *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996), S. 995. – [Link](#)
- [88] HULPKE, E. ; MANN, K.: Surface rainbow scattering of alkali ions from metal surfaces. In: *Surface Science* 133 (1983), S. 171. – [Link](#)
- [89] LAHAYE, R. J. W. E. ; KLEYN, A. W. ; STOLTE, S. ; HOLLOWAY, S.: The scattering of Ar from Ag(111): a molecular dynamics study. In: *Surface Science* 338 (1995), S. 169. – [Link](#)
- [90] WINTER, H.: Image charge effects in ion surface scattering. In: *J. Phys. Cond. Matter* 8 (1996), S. 10149. – [Link](#)
- [91] WINTER, H.: Image Charge Acceleration of Multi-Charged Argon Ions in Grazing Collisions with an Aluminum Surface. In: *EPL (Europhysics Letters)* 18 (1992), S. 207. – [Link](#)
- [92] WINTER, H. ; AUTH, C. ; SCHUCH, R. ; BEEBE, E.: Image acceleration of highly charged xenon ions in front of a metal surface. In: *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993), S. 1939. – [Link](#)
- [93] ERGINSOY, C.: Anisotropic Effects in Interactions of Energetic Charged Particles in a Crystal Lattice. In: *Phys. Rev. Lett.* 15 (1965), S. 360. – [Link](#)
- [94] APPLETON, B. R. ; ERGINSOY, C. ; GIBSON, W. M.: Channeling Effects in the Energy Loss of 3-11-MeV Protons in Silicon and Germanium Single Crystals. In: *Phys. Rev.* 161 (1967), S. 330. – [Link](#)
- [95] GEMMELL, D. S.: Channeling and related effects in the motion of charged particles through crystals. In: *Rev. Mod. Phys.* 46 (1974), S. 129. – [Link](#)
- [96] LIU, Q. K. K. ; BIRSACK, J. P. ; POSSELT, M.: Comparison of channeling trajectories and ranges calculated by the continuum potential approximation and Crystal-TRIM. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 102 (1995), S. 3. – [Link](#)

- [97] DANAILOV, D. ; RECHTIEN, J. H. ; SNOWDON, K. J.: Scattering of energetic beams at glancing incidence from crystal surfaces: a molecular dynamics simulation. In: *Surface Science* 259 (1991), S. 359–370. – [Link](#)
- [98] DANAILOV, D. M. ; O’CONNOR, D. J. ; SNOWDON, K. J.: Simulation of ballistic effects during scattering under glancing angles of incidence from crystal surfaces. In: *Surface Science* 347 (1996), S. 215. – [Link](#)
- [99] DANAILOV, D. ; GÄRTNER, K. ; CARO, A.: Computer simulation of the reflection of energetic ions from crystal surfaces at glancing incidence. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 153 (1999), S. 191. – [Link](#)
- [100] SIZMANN, R. ; VARELAS, C.: Surface channeling. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* 132 (1976), S. 633. – [Link](#)
- [101] MANSON, J. R. ; RITCHIE, R. H.: Energy loss in fast-particle surface scattering at grazing incidence. In: *Phys. Rev. B* 49 (1994), S. 4881. – [Link](#)
- [102] BARAGIOLA, R. A. ; ALONSO, E. V. ; FLORIO, A. O.: Electron emission from clean metal surfaces induced by low-energy light ions. In: *Phys. Rev. B* 19 (1979), S. 121. – [Link](#)
- [103] MIX, W. ; TZANEV, S. ; GOLICHOWSKI, A. ; SNOWDON, K. J. ; BILIC, A. ; GUMHALTER, B.: Energy dissipation of fast neutral argon and helium scattered at glancing incidence from Al(111). In: *Surface Science* 331–333 (1995), S. 332. – [Link](#)
- [104] WINTER, H.: Evidence for a kinematic threshold in the formation of He⁺ ions in grazing scattering from an Al(111) surface. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 78 (1993), S. 38
- [105] DANAILOV, D. M. ; PFANDZELTER, R. ; IGEL, T. ; WINTER, H. ; GARTNER, K.: Test of the interatomic potential in the eV-region by glancing-angle scattering of He-atoms from Fe(0 0 1). In: *Applied Surface Science* 171 (2001), S. 113. – [Link](#)
- [106] HECHT, T. ; AUTH, C. ; WINTER, H.: Scattering of fast He-atoms from single terraces of an Al(111)-surface. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 129 (1997), S. 194. – [Link](#)
- [107] WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Effect of thermal vibrations and their correlations on grazing scattering of atoms from crystal surfaces. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 258 (2007), S. 48. – [Link](#)
- [108] DESCARTES, R. ; OLSAMP, P. J. (Hrsg.): *Discours de la Méthode pour bien conduire sa raison et chercher la vérité dans les sciences / Discourse on Method, Optics, Geometry and Meteorology*. Bd. . Hack Publishing Co., 1637. – ISBN-13: 9780872205673
- [109] MCCLURE, J. D.: Surface Rainbows: A Similitude between Classical and Diffractive Scattering of Atoms from Crystalline Surfaces. In: *J. Chem. Phys.* 52 (1970), S. 2712. – [Link](#)

- [110] MCCLURE, J. D.: Atomic and Molecular Scattering from Solids. II. Comparison of Classical Scattering Models in Relation to Experiment. In: *J. Chem. Phys.* 51 (1969), S. 1687. – [Link](#)
- [111] KLEYN, A. W. ; HORN, T. C. M.: Rainbow scattering from solid surfaces. In: *Physics Reports* 199 (1991), S. 191. – [Link](#)
- [112] KRAUSE, H. F. ; DATZ, S. ; DITTNER, P. F. ; CAMPO, J. Gomez d. ; MILLER, P. D. ; MOAK, C. D. ; NEKOVIC, N. ; PEP MILLER, P. L.: Rainbow effect in axial ion channeling. In: *Phys. Rev. B* 33 (1986), S. 6036. – [Link](#)
- [113] PETROVIC, S. ; MILETIC, L. ; NESKOVIC, N.: Theory of rainbows in thin crystals: The explanation of ion channeling applied to Ne¹⁺ ions transmitted through a <100> Si thin crystal. In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), S. 184. – [Link](#)
- [114] BORKA, D. ; PETROVIC, S. ; NESKOVIC, N. ; MOWBRAY, D. J. ; MISKOVIC, Z. L.: Influence of the dynamical image potential on the rainbows in ion channeling through short carbon nanotubes. In: *Phys. Rev. A* 73 (2006), S. 062902. – [Link](#)
- [115] PFANDZELTER, R. ; KOWALSKI, T. ; IGEL, T. ; WINTER, H.: Rainbow scattering at surface steps. In: *Surface Science* 411 (1998), S. L894. – [Link](#)
- [116] ROLPH, E.: *Full featured double rainbow in Wrangell-St. Elias National Park, Alaska.* Wikimedia Commons. <http://en.wikipedia.org/wiki/File:Double-alaskan-rainbow.jpg>
- [117] FRASER, A. B.: Why can the supernumerary bows be seen in a rain shower? In: *J. Opt. Soc. Am.* 73 (1983), S. 1626. – [Link](#)
- [118] LEE, R. ; FRASER, A.: *The Rainbow Bridge*. Bd. . Penn State Press, 2001. – ISBN 0271019778
- [119] LAVEN, P.: Simulation of Rainbows, Coronas, and Glories by use of Mie Theory. In: *Appl. Opt.* 42 (2003), S. 436. – [Link](#)
- [120] MARSTON, P. L. ; TRINH, E. H.: Hyperbolic umbilic diffraction catastrophe and rainbow scattering from spheroidal drops. In: *Nature* 312 (1984), S. 529. – [Link](#)
- [121] JACKSON, J. D.: From Alexander of Aphrodisias to Young and Airy. In: *Physics Reports* 320 (1999), S. 27. – [Link](#)
- [122] ADAM, J. A.: The mathematical physics of rainbows and glories. In: *Physics Reports* 356 (2002), S. 229. – [Link](#)
- [123] BERRY, M. V.: Exuberant interference: rainbows, tides, edges, (de)coherence... In: *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 360 (2002), S. 1023. – [Link](#)
- [124] LEE, R. L.: Mie Theory, Airy Theory, and the Natural Rainbow. In: *Appl. Opt.* 37 (1998), S. 1506. – [Link](#)

- [125] LOCK, J. A.: Observability of atmospheric glories and supernumerary rainbows. In: *J. Opt. Soc. Am. A* 6 (1989), S. 1924. – [Link](#)
- [126] HUNDHAUSEN, E. ; PAULY, H.: Der Regenbogeneffekt und Interferenzerscheinungen bei molekularen Stößen. In: *Zeitschrift für Physik* 187 (1965), S. 305. – [Link](#)
- [127] MASON, E. A. ; MONCHICK, L.: Supernumerary Rainbows in Molecular Scattering. In: *J. Chem. Phys.* 41 (1964), S. 2221. – [Link](#)
- [128] TOENNIES, J. P.: Elastic Scattering: Introduction. In: *Faraday Discuss. Chem. Soc.* 55 (1973), S. 129. – [Link](#)
- [129] BUCK, U. ; PAULY, H.: Determination of Intermolecular Potentials by the Inversion of Molecular Beam Scattering Data. II. High Resolution Measurements of Differential Scattering Cross Sections and Inversion of the Data for Na-Hg. In: *J. Chem. Phys.* 54 (1971), S. 1929. – [Link](#)
- [130] BUCK, U. ; HOPPE, H. O. ; HUISKEN, F. ; PAULY, H.: Intermolecular potentials by the inversion of molecular beam scattering data. IV. Differential cross sections and potential for LiHg. In: *J. Chem. Phys.* 60 (1974), S. 4925. – [Link](#)
- [131] FORD, K. W. ; WHEELER, J. A.: Semiclassical description of scattering. In: *Annals of Physics* 7 (1959), S. 259. – [Link](#)
- [132] BERRY, M. V.: Uniform approximation for potential scattering involving a rainbow. In: *Proceedings of the Physical Society* 89 (1966), S. 479. – [Link](#)
- [133] FORD, K. W. ; WHEELER, J. A.: Semiclassical Description of Scattering. In: *Annals of Physics* 281 (2000), S. 608–635. – [Link](#)
- [134] KHOA, D. T. ; OERTZEN, W. von ; BOHLEN, H. G. ; OHKUBO, S.: Nuclear rainbow scattering and nucleus-nucleus potential. In: *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.* 34 (2007), S. R111. – [Link](#)
- [135] BRANDAN, M. E. ; SATCHLER, G. R.: The interaction between light heavy-ions and what it tells us. In: *Physics Reports* 285 (1997), S. 143. – [Link](#)
- [136] MICHEL, F. ; BRAU, F. ; REIDEMEISTER, G. ; OHKUBO, S.: Barrier-Wave-Internal-Wave Interference and Airy Minima in O16+O16 Elastic Scattering. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), S. 1823. – [Link](#)
- [137] MICHEL, F. ; REIDEMEISTER, G. ; OHKUBO, S.: Airy structure in 16O+16O elastic scattering between 5 and 10 MeV/nucleon. In: *Phys. Rev. C* 63 (2001), S. 034620. – [Link](#)
- [138] BOATO, G. ; CANTINI, P. ; GARIBALDI, U. ; LEVI, A. C. ; MATTERA, L. ; SPADACINI, R. ; TOMMEI, G. E.: Diffraction and rainbow in atom-surface scattering. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 6 (1973), S. L394. – [Link](#)
- [139] GARIBALDI, U. ; LEVI, A. C. ; SPADACINI, R. ; TOMMEI, G. E.: Quantum theory of atom-surface scattering: Diffraction and rainbow. In: *Surface Science* 48 (1975), S. 649. – [Link](#)

-
- [140] CARDILLO, M. J. ; BECKER, G. E. ; SIBENER, S. J. ; MILLER, D. R.: The diffraction of He atoms at the GaAs(110) surface. In: *Surface Science* 107 (1981), S. 469. – [Link](#)
- [141] CARDILLO, M. J. ; LAMBERT, W. R.: Order and structure of semiconductor surfaces: An assessment with He diffraction. In: *Surface Science* 168 (1986), S. 724–733. – [Link](#)
- [142] LAUGHLIN, R. B.: Helium diffraction from the GaAs(110) surface and the generation of helium-surface potentials. In: *Phys. Rev. B* 25 (1982), S. 2222. – [Link](#)
- [143] AVRIN, William F. ; MERRILL, Robert P.: Simplified analysis of helium scattering: supernumerary rainbows from a soft, corrugated potential. In: *Surface Science* 311 (1994), S. 269. – [Link](#)
- [144] ANDREEV, E. A.: Quantum and classical characteristics of glancing scattering of fast atoms on the surface of a crystal. In: *Russian Journal of Physical Chemistry* 76 (2002), S. 164
- [145] MCCLURE, J. D.: Determination of Atom-Surface Properties for Ne/LiF by Scattering Studies. In: *J. Chem. Phys.* 57 (1972), S. 2823. – [Link](#)
- [146] MCCLURE, J. D.: High-Resolution Calculations on Atom-Surface Scattering: Method and Comparison with Experiment for Ne/LiF. In: *J. Chem. Phys.* 57 (1972), S. 2810. – [Link](#)
- [147] GOODMAN, F. O.: Review of the theory of the scattering of gas atoms by solid surfaces. In: *Surface Science* 26 (1971), S. 327. – [Link](#)
- [148] BARKER, J. A. ; DION, D. R. ; MERRILL, R. P.: Classical surface scattering computations; Rainbows and energy exchange. In: *Surface Science* 95 (1980), S. 15. – [Link](#)
- [149] STEELE, W. A.: Calculations of atomic scattering from surfaces : I. An analytically soluble model for a rigid solid. In: *Surface Science* 38 (1973), S. 1. – [Link](#)
- [150] STOLL, A.G. ; MERRILL, R. P.: Rainbow scattering from a strongly periodic metal surface. In: *Surface Science* 40 (1973), S. 405. – [Link](#)
- [151] TENNER, A. D. ; GILLEN, K. T. ; HORN, T. C. M. ; LOS, J. ; KLEYN, A. W.: Rainbows in Energy- and Angle-Resolved Ion Scattering from Surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 52 (1984), S. 2183. – [Link](#)
- [152] TENNER, A. D. ; SAXON, R. P. ; GILLEN, K. T. ; HARRISON JR., D. E. ; HORN, T. C. ; KLEYN, A. W.: Computer simulations and rainbow patterns of alkali ion scattering from metal surfaces. In: *Surface Science* 172 (1986), S. 121. – [Link](#)
- [153] ADLER, D. L. ; COOPER, B. H.: Energy and angular distributions of 100- to 400-eV Na⁺ scattered from Cu(110). In: *Phys. Rev. B* 43 (1991), S. 3876. – [Link](#)

- [154] FOLKERTS, L. ; SCHIPPERS, S. ; ZEHNER, D. M. ; MEYER, F. W.: Time Scales for Charge Equilibration of Oq^+ ($3 \leq q \leq 8$) Ions during Surface-Channeling Interactions with Au(110). In: *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995), S. 2204. – [Link](#)
- [155] MEYER, F. W. ; FOLKERTS, L. ; SCHIPPERS, S.: Angular and charge state distributions of highly charged ions scattered during low energy surface-channeling interactions with Au(110). In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 100 (1995), S. 366. – [Link](#)
- [156] MANNAMI, M. ; FUJII, Y. ; KIMURA, K.: A new method to detect surface steps by specularly reflected fast ions. In: *Surface Science* 204 (1988), S. 213. – [Link](#)
- [157] VICANEK, M. ; SCHLATHÖLTER, T. ; HEILAND, W.: Scattering of fast H₂ molecules from Pd surfaces: classical trajectory simulations. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 115 (1996), S. 206. – [Link](#)
- [158] RICHARD-VIARD, M. ; ABIDI, S. ; BÉNAZETH, C. ; BENOIT-CATTIN, P. ; CAFARELLI, P.: Azimuthal dependence of charge exchange in grazing scattering of 4 keV ions on a NaCl(1 0 0) surface: Role of the trajectory. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 184 (2001), S. 490. – [Link](#)
- [159] DANAILOV, D. M. ; PFANDZELTER, R. ; IGEL, T. ; WINTER, H.: Multimodal angular distributions in grazing scattering of fast He-atoms from Fe(0 0 1) surfaces. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 164-165 (2000), S. 583. – [Link](#)
- [160] DANAILOV, D. ; PFANDZELTER, R. ; IGEL, T. ; WINTER, H. ; GÄRTNER, K.: Deduction of the He-Fe interaction potential in eV-range from experimental data by computer simulation in grazing ion-surface scattering: Row-model. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 180 (2001), S. 265. – [Link](#)
- [161] LIDAR, D. A.: Inversion of randomly corrugated surface structure from atom scattering data. In: *Inverse Problems* 14 (1998), S. 1299. – [Link](#)
- [162] BERRY, M. V. ; MOUNT, K. E.: Semiclassical approximations in wave mechanics. In: *Reports on Progress in Physics* 35 (1972), S. 315. – [Link](#)
- [163] BUCK, U. ; KÖHLER, K. A. ; PAULY, H.: Messungen der Glorienstreuung des totalen Streuquerschnitts von Na-Hg. In: *Z. Physik* 244 (1971), S. 180. – [Link](#)
- [164] MCCANN, K. J. ; CELLI, V.: A semiclassical treatment of atom-surface scattering: He + LiF(001). In: *Surface Science* 61 (1976), S. 10. – [Link](#)
- [165] PECHUKAS, P.: Time-Dependent Semiclassical Scattering Theory. I. Potential Scattering. In: *Phys. Rev.* 181 (1969), S. 166. – [Link](#)
- [166] BERRY, M. V.: Cusped rainbows and incoherence effects in the rippling-mirror model for particle scattering from surfaces. In: *J. Phys. A: Math. Gen.* 8 (1975), S. 566. – [Link](#)
- [167] HILL, N.R. ; CELLI, V.: Multiple hits in atom-surface diffraction. In: *Surface Science* 75 (1978), S. 577. – [Link](#)

-
- [168] MILLER, William H.: Classical S Matrix: Numerical Application to Inelastic Collisions. In: *J. Chem. Phys.* 53 (1970), S. 3578. – [Link](#)
- [169] DION, D. R. ; DOLL, J. D.: Semiclassical theory of atom/solid surface collisions; Solution of steele's model. In: *Surface Science* 58 (1976), S. 415. – [Link](#)
- [170] CONNOR, J. N. L. ; MARCUS, R. A.: Theory of Semiclassical Transition Probabilities for Inelastic and Reactive Collisions. II Asymptotic Evaluation of the S Matrix. In: *J. Chem. Phys.* 55 (1971), S. 5636. – [Link](#)
- [171] MARCUS, R. A.: Theory of Semiclassical Transition Probabilities for Inelastic and Reactive Collisions. V. Uniform Approximation in Multidimensional Systems. In: *J. Chem. Phys.* 57 (1972), S. 4903. – [Link](#)
- [172] HUBBARD, Lynn M. ; MILLER, W. H.: Application of the semiclassical perturbation (SCP) approximation to diffraction and rotationally inelastic scattering of atoms and molecules from surfaces. In: *J. Chem. Phys.* 78 (1983), S. 1801. – [Link](#)
- [173] ZUREK, W. H.: Decoherence and the Transition from Quantum to Classical. In: *Phys. Today* 44 (1991), S. 36. – [Link](#)
- [174] BEEBY, J. L.: The scattering of helium atoms from surfaces. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 4 (1971), S. L359. – [Link](#)
- [175] VIDALI, G. ; HUTCHINGS, C.: Measurement of the Debye-Waller factor for He-LiF(001). In: *Phys. Rev. B* 37 (1988), S. 10374. – [Link](#)
- [176] LEVI, A. C.: Return to coherence via Debye-Waller factor quenching. In: *J. Phys.: Condensed Matter* 21 (2009), S. 405004. – [Link](#)
- [177] PFANDZELTER, R.: Effects of defect structures at surfaces and thin films on grazing scattering of fast ions. In: *Phys. Rev. B* 57 (1998), S. 15496. – [Link](#)
- [178] MASEL, R. I. ; MERRILL, R. P. ; MILLER, W. H.: Quantum scattering from a sinusoidal hard wall: Atomic diffraction from solid surfaces. In: *Phys. Rev. B* 12 (1975), S. 5545. – [Link](#)
- [179] MASEL, Richard I. ; MERRILL, Robert P. ; MILLER, William H.: Atomic scattering from a sinusoidal hard wall: Comparison of approximate methods with exact quantum results. In: *J. Chem. Phys.* 65 (1976), S. 2690. – [Link](#)
- [180] GARCÍA, N. ; IBÁÑEZ, J. ; SOLANA, J. ; CABRERA, N.: Analysis of the methods proposed for computing the scattering of atoms from a hard corrugated surface model of He/LiF (001). In: *Surface Science* 60 (1976), S. 385. – [Link](#)
- [181] GARCIA, N.: The scattering of He atoms from a hard corrugated surface model using the GR method. I. In: *J. Chem. Phys.* 67 (1977), S. 897. – [Link](#)
- [182] GARCIA, N.: The scattering of atoms from a corrugated wall model with the GR method in the system He/LiF(001). In: *Surface Science* 63 (1977), S. 113. – [Link](#)

- [183] GOODMAN, F. O.: Scattering of atoms by a stationary sinusoidal hard wall: Rigorous treatment in $(n+1)$ dimensions and comparison with the Rayleigh method. In: *J. Chem. Phys.* 66 (1977), S. 976. – [Link](#)
- [184] SALANON, B. ; ARMAND, G.: Scattering from a hard corrugated wall: An exact solution in the two-dimensional case. In: *Surface Science* 112 (1981), S. 78. – [Link](#)
- [185] RIEDER, K. H. ; GARCIA, N. ; CELLI, V.: An effective procedure to determine corrugation functions from atomic beam-diffraction intensities. In: *Surface Science* 108 (1981), S. 169. – [Link](#)
- [186] BOATO, G. ; CANTINI, P. ; MATTERA, L.: A study of the (001)LiF surface at 80 K by means of diffractive scattering of He and Ne atoms at thermal energies. In: *Surface Science* 55 (1976), S. 141. – [Link](#)
- [187] GARCÍA, N.: Scattering of He Atoms from Crystal Surfaces: A Tentative Analysis on the Surface Crystallography of LiF(001). In: *Phys. Rev. Lett.* 37 (1976), S. 912. – [Link](#)
- [188] GARCÍA, N. ; IBÁEZ, J. ; SOLANA, J. ; CABRERA, N.: On the quantum rainbow in surface scattering. In: *Solid State Communications* 20 (1976), S. 1159. – [Link](#)
- [189] MANIV, T.: A quasi-hard wall model for the scattering of atomic beams from solid surfaces. In: *Chemical Physics* 65 (1982), S. 177. – [Link](#)
- [190] BENEDEK, G. ; BRUSDEYLINS, G. ; SENZ, V. ; SKOFRONICK, J. G. ; TOENNIES, J. P. ; TRAEGER, F. ; VOLLMER, R.: Helium atom scattering study of the surface structure and dynamics of in situ cleaved MgO(001) single crystals. In: *Phys. Rev. B* 64 (2001), S. 125421. – [Link](#)
- [191] CANTINI, P. ; CEVASCO, E.: The MgO(001) surface studied by helium diffraction. In: *Surface Science* 148 (1984), S. 37. – [Link](#)
- [192] BRUSDEYLINS, G. ; DOAK, R. B. ; SKOFRONICK, J. G. ; TOENNIES, J. P.: Elastic and inelastic scattering of He atoms from the (001) crystal surface of MgO. In: *Surface Science* 128 (1983), S. 191. – [Link](#)
- [193] JUNG, D. R. ; CUI, J. ; FRANKL, D. R.: The MgO (001) surface studied by time-resolved He atom scattering. In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 9 (1991), S. 1589. – [Link](#)
- [194] RIEDER, K. H.: Helium diffraction from MgO(100). In: *Surface Science* 118 (1982), S. 57. – [Link](#)
- [195] LIEBSCH, A. ; HARRIS, J.: On the diffraction of He by a Ni(110) surface. In: *Surface Science* 111 (1981), S. L721. – [Link](#)
- [196] ARMAND, G. ; MANSON, J. R.: An exact iterative solution of the atom-surface scattering problem for realistic potentials. In: *Surface Science* 119 (1982), S. L299. – [Link](#)

-
- [197] MARTÍNEZ-CASADO, R. ; MEYER, B. ; MIRET-ARTÉS, S. ; TRAEGER, F. ; WÖLL, Ch.: Diffraction patterns of He atoms from the MgO(100) surface calculated by the close-coupling method. In: *J. Phys.: Condensed Matter* 19 (2007), S. 305006. – [Link](#)
- [198] COLE, M. W. ; FRANKL, D. R.: Atomic and molecular beam scattering from crystal surfaces in the quantum regime. In: *Surface Science* 70 (1978), S. 585. – [Link](#)
- [199] KENNEDY, S. M. ; PAGANIN, D. M. ; JESSON, D. E.: Transition between short and long wavelength limits in quantum mechanical reflection from a linear potential. In: *American Journal of Physics* 76 (2008), S. 158. – [Link](#)
- [200] LÉVY-LEBLOND, J.-M.: A geometrical quantum phase effect. In: *Physics Letters A* 125 (1987), S. 441. – [Link](#)
- [201] ALLMAN, B. ; CIMMINO, A. ; GRIFFIN, S. ; KLEIN, A.: Quantum Phase Shift Caused by Spatial Confinement. In: *Foundations of Physics* 29 (1999), S. 325. – [Link](#)
- [202] HARIHARAN, P. ; ROBINSON, P. A.: The gouy phase shift as a geometrical quantum effect. In: *Journal of Modern Optics* 43 (1996), S. 219. – [Link](#)
- [203] FENG, S. ; WINFUL, H. G.: Physical origin of the Gouy phase shift. In: *Opt. Lett.* 26 (2001), S. 485. – [Link](#)
- [204] PAZ, I. G. d. ; NEMES, M. C. ; FARIA, J. G. Peixoto d.: Gouy phase and matter waves. In: *Journal of Physics: Conference Series* 84 (2007), S. 012016. – [Link](#)
- [205] SIMONOVIC, N.: *persönliche Mitteilung*. . – Institute of Physics, P.O. Box 57, 11001 Belgrade, Serbia
- [206] SANZ, A. S. ; BORONDO, F. ; MIRET-ARTÉS, S.: On the classical limit in atom-surface diffraction. In: *EPL (Europhysics Letters)* 55 (2001), S. 303. – [Link](#)
- [207] LOEWEN, E. G.: Diffraction gratings for spectroscopy. In: *J. Phys. E: Scientific Instruments* 3 (1970), S. 953. – [Link](#)
- [208] PALMER, E. W. ; HUTLEY, M. C. ; FRANKS, A. ; VERRILL, J. F. ; GALE, B.: Diffraction gratings. In: *Reports on Progress in Physics* 38 (1975), S. 975. – [Link](#)
- [209] DALEY, R. S. ; FARRELLY, D. ; WILLIAMS, R. S.: Rainbow scattering at shadowing and blocking critical angles. In: *Surface Science* 234 (1990), S. 355. – [Link](#)
- [210] WOLKEN, G. J.: Theoretical studies of atom-solid elastic scattering: He + LiF. In: *J. Chem. Phys.* 58 (1973), S. 3047. – [Link](#)
- [211] CHIROLI, C. ; LEVI, A. C.: Quantum theory of atom-surface scattering: Exact solutions and evaluation of approximations. In: *Surface Science* 59 (1976), S. 325. – [Link](#)

- [212] CARDILLO, M. J.: Nature of the Si(111)7x7 reconstruction. In: *Phys. Rev. B* 23 (1981), S. 4279. – [Link](#)
- [213] MATULEVICH, Y.: *persönliche Mitteilung*. – Department of Physics, State University Moscow, Russia
- [214] SEIFERT, J.: *persönliche Mitteilung*. – Humboldt-Universität zu Berlin, Inst. für Physik, AG Winter
- [215] ARMAND, G. ; MANSON, J. R.: Scattering of Neutral Atoms by an Exponential Corrugated Potential. In: *Phys. Rev. Lett.* 43 (1979), S. 1839. – [Link](#)
- [216] MEYER, H.-D. ; TOENNIES, J. P.: A classical path approximation for diffractive surface scattering. In: *Surface Science* 148 (1984), S. 58. – [Link](#)
- [217] WETHEKAM, S. E.: *Ladungsaustausch schneller Edelgasatome und Fullere-ne mit Festkörperoberflächen*, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2009. <http://edoc.hu-berlin.de/docviews/abstract.php?id=29949>
- [218] HECHT, T.: *Effekt der Bandstruktur von Cu(111)- und Cu(110)- Oberflächen auf den resonanten Ladungstransfer bei streifender Streuung*, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2000
- [219] SORTAIS, P.: Recent progress in making highly charged ion beams. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 98 (1995), Nr. 1, S. 508. – [Link](#)
- [220] WETHEKAM, S.: *persönliche Mitteilung*. – Humboldt-Universität zu Berlin, Inst. für Physik, AG Winter
- [221] UNIPAN, M. ; ROBIN, A. ; WINTERS, D. F. A. ; MORGENSTERN, R. ; HOEKSTRA, R.: Probing local spin ordering at surfaces by He[sup 2+] ions. In: *Phys. Rev. A* 74 (2006), S. 062901. – [Link](#)
- [222] LUBINSKI, G. ; JUHASZ, Z. ; MORGENSTERN, R. ; HOEKSTRA, R.: State-selective electron-capture cross section measurements for low-energy collisions of He-like ions on H₂. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 33 (2000), S. 5275. – [Link](#)
- [223] WIZA, L. J.: Microchannel plate detectors. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* 162 (1979), S. 587. – [Link](#)
- [224] JAGUTZKI, O. ; MERGEL, V. ; ULLMANN-PFLEGER, K. ; SPIELBERGER, L. ; SPILLMANN, U. ; DÖRNER, R. ; SCHMIDT-BÖCKING, H.: A broad-application microchannel-plate detector system for advanced particle or photon detection tasks: large area imaging, precise multi-hit timing information and high detection rate. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 477 (2002), S. 244. – [Link](#)
- [225] LIÉNARD, E. ; HERBANE, M. ; BAN, G. ; DARIUS, G. ; DELAHAYE, P. ; DURAND, D. ; FLÉCHARD, X. ; LABALME, M. ; MAUGER, F. ; MERY, A. ; NAVILIAT-CUNCIC, O. ; RODRÍGUEZ, D.: Performance of a micro-channel plates position sensitive detector. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 551 (2005), S. 375. – [Link](#)

- [226] BERNHARD, T.: *Studium von Wachstum und Struktur ultradünner 3d-Übergangsmetallfilme auf einer Cu(100)-Oberfläche mittels streifender Ionenstreuung*, Diplomarbeit, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2002
- [227] PFANDZELTER, R. ; IGEL, T. ; WINTER, H.: Anomalous thermal behavior of the Fe(100) surface observed by grazing ion-surface scattering. In: *Phys. Rev. B* 56 (1997), S. 14948. – [Link](#)
- [228] PFANDZELTER, R. ; HECHT, T. ; WINTER, H.: Angular straggling in grazing scattering of fast He-atoms from an Al(111)-surface. In: *Europhys. Lett.* 44 (1998), S. 116. – [Link](#)
- [229] BERNHARD, T.: *Untersuchung elektronischer Anregungs- und Beugungseffekte sowie Wachstum, Struktur und magnetischer Eigenschaften ultradünner 3d-Metallfilme auf Cu(001) mittels streifender Ionenstreuung*, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2007. <http://edoc.hu-berlin.de/docviews/abstract.php?id=27785>
- [230] ROBIN, A. ; REINIGER, M. ; NÄRMANN, A. ; SCHLEBERGER, M. ; JUARISTI, J. I. ; HEILAND, W.: Trajectory straggling and nonlinear effects in the energy loss of surface-channeled ions. In: *Phys. Rev. B* 67 (2003), S. 165409. – [Link](#)
- [231] SCHÜLLER, A. ; ADAMOV, G. ; WETHEKAM, S. ; MAASS, K. ; MERTENS, A. ; WINTER, H.: Dynamic dependence of interaction potentials for keV atoms at metal surfaces. In: *Phys. Rev. A* 69 (2004), S. 050901. – [Link](#)
- [232] SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; MERTENS, A. ; MAASS, K. ; WINTER, H. ; GARTNER, K.: Interatomic potentials from rainbow scattering of keV noble gas atoms under axial surface channeling. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 230 (2005), S. 172. – [Link](#)
- [233] SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Interatomic potentials between noble gas and Ag atoms from axial surface channeling. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 261 (2007), S. 578. – [Link](#)
- [234] HERMANN, K.: *SURFACE EXPLORER*. – [Link](#) - Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft
- [235] KITTEL, C. ; AUFLAGE, 12. (Hrsg.): *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag, 1999
- [236] NOONAN, J. R. ; DAVIS, H. L.: Truncation-induced multilayer relaxation of the Al(110) surface. In: *Phys. Rev. B* 29 (1984), S. 4349. – [Link](#)
- [237] ANDERSEN, J. N. ; NIELSEN, H. B. ; PETERSEN, L. ; ADAMS, D. L.: Oscillatory relaxation of the Al(110) surface. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 17 (1984), S. 173. – [Link](#)
- [238] MASUD, N. ; BAUDOING, R. ; ABERDAM, D. ; GAUBERT, C.: Meed study of Al(001) surface. In: *Surface Science* 133 (1983), S. 580. – [Link](#)
- [239] WINTTERLIN, J. ; WIECHERS, J. ; BRUNE, H. ; GRITSCH, T. ; HÖFER, H. ; BEHM, R. J.: Atomic-Resolution Imaging of Close-Packed Metal Surfaces by Scanning Tunneling Microscopy. In: *Phys. Rev. Lett.* 62 (1989), S. 59. – [Link](#)

- [240] PFANDZELTER, R. ; BERNHARD, T. ; WINTER, H.: Ion Beam Triangulation of Surfaces and Ultrathin Films. In: *Surface Review and Letters* 10 (2003), S. 399. – [Link](#)
- [241] PFANDZELTER, R. ; BERNHARD, T. ; WINTER, H.: Ion Beam Triangulation of Ultrathin Mn and CoMn Films Grown on Cu(001). In: *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003), S. 036102. – [Link](#)
- [242] BUSCH, M. ; BLAUTH, D. ; WINTER, H.: Adsorption and NiO(1 0 0) formation by atomic and molecular oxygen on Ni(1 1 0). In: *Surface Science* 602 (2008), S. 2808. – [Link](#)
- [243] BERNHARD, T. ; SEIFERT, J. ; WINTER, H.: Ion beam triangulation based on electron detection for studies on the structure of 1 ML Mn on Cu(001). In: *J. Phys.: Condensed Matter* 21 (2009), S. 134001. – [Link](#)
- [244] SEIFERT, J. ; BLAUTH, D. ; WINTER, H.: Evidence for 2D-Network Structure of Monolayer Silica Film on Mo(112). In: *Phys. Rev. Lett.* 103 (2009), S. 017601. – [Link](#)
- [245] SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Interaction potentials for Na, Al and Ar atoms from rainbow scattering under axial surface channeling from Al(1 1 1) and Al(0 0 1) surfaces. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 256 (2007), S. 122. – [Link](#)
- [246] PUSKA, M.: Atoms Embedded in Electron Gas. In: *Springer Proceedings in Physics* 48 (1990), S. 134
- [247] PUSKA, M. J. ; NIEMINEN, R. M.: Atoms embedded in an electron gas: Beyond the local-density approximation. In: *Phys. Rev. B* 43 (1991), S. 12221. – [Link](#)
- [248] HULT, E. ; HYLDGAARD, P. ; ROSSMEISL, J. ; LUNDQVIST, B. I.: Density-functional calculation of van der Waals forces for free-electron-like surfaces. In: *Phys. Rev. B* 64 (2001), S. 195414. – [Link](#)
- [249] WINTER, H. ; JUARISTI, J. I. ; NAGY, I. ; ARNAU, A. ; ECHENIQUE, P. M.: Energy loss of slow ions in a nonuniform electron gas. In: *Phys. Rev. B* 67 (2003), S. 245401. – [Link](#)
- [250] SMITH, J. R.: Self-Consistent Many-Electron Theory of Electron Work Functions and Surface Potential Characteristics for Selected Metals. In: *Phys. Rev.* 181 (1969), S. 522. – [Link](#)
- [251] SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Dynamic dependence of the interaction potentials for grazing scattering of fast atoms from metal and insulator surfaces. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 267 (2009), S. 2621. – [Link](#)
- [252] TIWALD, P. ; SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; TÖKESI, K. ; AIGNER, F. ; GRÄFE, S. ; LEMELL, C. ; BURGDÖRFER, J.: Interaction potentials for fast atoms in front of Al surfaces probed by rainbow scattering. In: *Phys. Rev. B* im Druck (2010), S.

- [253] WINTER, H. ; MERTENS, A. ; PFANDZELTER, R. ; STAEMMLER, V.: Energy transfer of keV Ne atoms to the lattice of a LiF(001) surface under channeling. In: *Phys. Rev. A* 66 (2002), S. 022902. – [Link](#)
- [254] PFANDZELTER, R. ; HECHT, T. ; WINTER, H.: Angular distributions of fast noble gas atoms and ions after grazing scattering from a Cu(1 1 1) surface. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 182 (2001), S. 213. – [Link](#)
- [255] WINTER, H. ; SCHULLER, A.: Rainbow scattering under axial surface channeling. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 232 (2005), S. 165. – [Link](#)
- [256] EKINCI, Y. ; TOENNIES, J. P.: Thermal expansion of the LiF(0 0 1) surface. In: *Surface Science* 563 (2004), S. 127. – [Link](#)
- [257] MERTENS, A. ; MAASS, K. ; LEDERER, S. ; WINTER, H. ; EDER, H. ; STÖCKL, J. ; WINTER, HP. ; AUMAYR, F. ; VIEFHAUS, J. ; BECKER, U.: Studies on electron emission during grazing impact of keV-hydrogen atoms on a LiF(0 0 1) surface via translational spectroscopy. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 182 (2001), S. 23. – [Link](#)
- [258] LEDERER, S. ; MERTENS, A. ; WINTER, H. ; AUMAYR, F. ; WINTER, HP. ; STAEMMLER, V.: Electronic processes near kinematic threshold for grazing scattering of fast hydrogen atoms from a LiF(0 0 1) surface. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 203 (2003), S. 23. – [Link](#)
- [259] LEDERER, S.: *Flugzeitaufgelöste Studien zur Elektronenemission bei der streifenden Streuung schneller atomarer Projektile an Isolatoroberflächen*, Diplomarbeit, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2001. – [Link](#)
- [260] SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Diffraction of fast atoms under axial surface channeling conditions. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 267 (2009), Nr. 4, S. 628. – [Link](#)
- [261] SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; GRAVIELLE, M. S. ; PRUNEDA, J. M. ; MIRAGLIA, J. E.: He-LiF surface interaction potential from fast atom diffraction. In: *Phys. Rev. A* 80 (2009), S. 062903. – [Link](#)
- [262] O'KEEFE, D. R. ; PALMER, R. L. ; SALTSBURG, H. ; J. N. SMITH, Jr.: Reflection and Diffraction of He, D₂, and H₂ from LiF. In: *J. Chem. Phys.* 49 (1968), S. 5194. – [Link](#)
- [263] O'KEEFE, D. R. ; JOE N. SMITH, Jr. ; PALMER, R. L. ; SALTSBURG, H.: Comparisons of the Reflection and Diffraction of [^{sup} 3]He, [^{sup} 4]He, H[_{sub} 2], and D[_{sub} 2] from the (001) Surface of LiF. In: *J. Chem. Phys.* 52 (1970), S. 4447. – [Link](#)
- [264] O'KEEFE, D.R. ; SMITH JR., Joe N. ; PALMER, R.L. ; SALTSBURG, Howard: Intensity data for the reflection and diffraction of 3He, 4He, H₂ AND D₂ From the (001) Surface of LiF. In: *Surface Science* 20 (1970), S. 27. – [Link](#)
- [265] WILLIAMS, B. R.: On the Elastic and Inelastic Scattering of Neon Atoms by a (100) Surface of Lithium Fluoride at 150[degree]K. In: *J. Chem. Phys.* 55 (1971), S. 1315. – [Link](#)

- [266] STRAUMANIS, M. E. ; S., Jayant S.: Low temperature lattice parameters and expansion coefficients of Al₂Au and LiF Gruneisen constants of LiF. In: *Z. anorg. allg. Chem.* 391 (1972), S. 79. – [Link](#)
- [267] LARAMORE, G. E. ; SWITENDICK, A. C.: Low-Energy-Electron-Diffraction Intensity Profiles and Electronic Energy Bands for Lithium Fluoride. In: *Phys. Rev. B* 7 (1973), S. 3615. – [Link](#)
- [268] VOGT, J. ; WEISS, H.: The structure of KBr(100) and LiF(100) single crystal surfaces: a tensor low energy electron diffraction analysis. In: *Surface Science* 501 (2001), S. 203. – [Link](#)
- [269] WANG, N.-P. ; ROHLFING, M. ; KRÜGER, P. ; POLLMANN, J.: Quasiparticle band structure and optical spectrum of LiF(001). In: *Phys. Rev. B* 67 (2003), S. 115111. – [Link](#)
- [270] BORISOV, A. G. ; MERTENS, A. ; WINTER, H. ; KAZANSKY, A. K.: Evidence for the Stopping of Slow Ions by Excitations of Optical Phonons in Insulators. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), S. 5378. – [Link](#)
- [271] WILLIAMS, B. R.: Scattering of Helium Atoms by Phonons in the (001) Surface of LiF at 150K. In: *J. Chem. Phys.* 55 (1971), S. 3220. – [Link](#)
- [272] WINTER, H. ; WINTER, H. P.: Classical model of kinetic electron emission near threshold induced by impact of atomic projectiles on a free-electron gas metal. In: *Europhys. Lett.* 62 (2003), S. 739. – [Link](#)
- [273] RONCIN, P. ; VILLETTE, J. ; ATANAS, J. P. ; KHEMLICHE, H.: Energy Loss of Low Energy Protons on LiF(100): Surface Excitation and H- Mediated Electron Emission. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), S. 864. – [Link](#)
- [274] LEDERER, S.: *unveröffentlicht.* . – Humboldt-Universität zu Berlin, Inst. für Physik, AG Winter
- [275] WERTHEIM, G. K. ; BUTLER, M. A. ; WEST, K. W. ; BUCHANAN, D. N. E.: Determination of the Gaussian and Lorentzian content of experimental line shapes. In: *Review of Scientific Instruments* 45 (1974), S. 1369. – [Link](#)
- [276] IDA, T. ; ANDO, M. ; TORAYA, H.: Extended pseudo-Voigt function for approximating the Voigt profile. In: *Journal of Applied Crystallography* 33 (2000), S. 1311. – [Link](#)
- [277] PRUNEDA, J. M.: *interne Mitteilung.* . – Institut de Ciencia de Materials de Barcelona
- [278] AIGNER, F. ; SIMONOVIC, N. ; SOLLEDER, B. ; WIRTZ, L. ; BURGDÖRFER, J.: Influence of inelastic processes on fast-atom-surface diffraction. In: *Journal of Physics: Conference Series* 133 (2008), S. 012014. – [Link](#)
- [279] AIGNER, F. ; SIMONOVIC, N. ; SOLLEDER, B. ; WIRTZ, L. ; BURGDÖRFER, J.: Suppression of Decoherence in Fast-Atom Diffraction at Surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), S. 253201. – [Link](#)

- [280] WIRTZ, L.: *persönliche Mitteilung*. – IEMN, CNRS - UMR, Villeneuve d'Ascq, France
- [281] CELLI, V. ; EICHENAUER, D. ; KAUFHOLD, A. ; TOENNIES, J. P.: Pairwise additive semi ab initio potential for the elastic scattering of He atoms from the LiF(001) crystal surface. In: *J. Chem. Phys.* 83 (1985), S. 2504. – [Link](#)
- [282] AHLRICHS, R. ; BOHM, H. J. ; BRODE, S. ; TANG, K. T. ; TOENNIES, J. P.: Erratum: Interaction potentials for alkali ion-rare gas and halogen ion-rare gas systems. In: *J. Chem. Phys.* 98 (1993), S. 3579. – [Link](#)
- [283] LARSEN, P. H. ; SKULLERUD, H. R. ; LOVAAS, T. H. ; STEFANSSON, T.: Transport coefficients and interaction potentials for lithium ions in helium and argon. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 21 (1988), S. 2519. – [Link](#)
- [284] GRAY, B. R. ; WRIGHT, Timothy G. ; WOOD, E. L. ; VIEHLAND, L. A.: Accurate potential energy curves for F-Rg (Rg=He-Rn): Spectroscopy and transport coefficients. In: *Phys. Chem. Chem. Phys.* 8 (2006), S. 4752. – [Link](#)
- [285] JARDINE, A. P. ; DWORSKI, S. ; FOUQUET, P. ; ALEXANDROWICZ, G. ; RILEY, D. J. ; LEE, G. Y. H. ; ELLIS, J. ; ALLISON, W.: Ultrahigh-Resolution Spin-Echo Measurement of Surface Potential Energy Landscapes. In: *Science* 304 (2004), S. 1790. – [Link](#)
- [286] RILEY, D. J. ; JARDINE, A. P. ; DWORSKI, S. ; ALEXANDROWICZ, G. ; FOUQUET, P. ; ELLIS, J. ; ALLISON, W.: A refined He–LiF(001) potential from selective adsorption resonances measured with high-resolution helium spin-echo spectroscopy. In: *J. Chem. Phys.* 126 (2007), S. 104702. – [Link](#)
- [287] FRIGO, A. ; TOIGO, F. ; COLE, M. W. ; GOODMAN, F. O.: He-atom interaction with the (001) surfaces of LiF and NaCl. In: *Phys. Rev. B* 33 (1986), S. 4184. – [Link](#)
- [288] MIGLIO, L. ; QUASSO, F. ; BENEDEK, G.: On the helium-alkali halide surface potential: Surface corrugation vs ionic size. In: *J. Chem. Phys.* 83 (1985), S. 417. – [Link](#)
- [289] FOWLER, P. W. ; HUTSON, Jeremy M.: Pairwise-additive models for atom-surface interaction potentials: An ab initio study of He-LiF. In: *Phys. Rev. B* 33 (1986), S. 3724. – [Link](#)
- [290] EICHENAUER, D. ; TOENNIES, P. J.: Pairwise additive potential models for the interaction of He atoms with the (001) surfaces of LiF, NaF, NaCl and LiCl. In: *Surface Science* 197 (1988), S. 267. – [Link](#)
- [291] TSUCHIDA, A.: Calculations of elastic scattering of He atoms by a pairwise interaction with a LiF(001) crystal surface. In: *Surface Science* 46 (1974), S. 611. – [Link](#)
- [292] TSUCHIDA, A.: Scattering of molecules by a crystal surface: I. He and LiF surface. In: *Surface Science* 14 (1969), S. 375. – [Link](#)

- [293] MEYER, E. ; HEINZELMANN, H. ; RUDIN, H. ; GÜNTHERODT, H. J.: Atomic resolution on LiF (001) by atomic force microscopy. In: *Z. Phys. B* 79 (1990), S. 3. – [Link](#)
- [294] CABRERA, N. ; GOODMAN, F. O.: Summation of Pairwise Potentials in Gas-Surface Interaction Calculations. In: *J. Chem. Phys.* 56 (1972), S. 4899. – [Link](#)
- [295] ZEHR, F. J. ; BERRY, H. W.: Elastic Scattering of Lithium Ions in Helium and Hydrogen. In: *Phys. Rev.* 159 (1967), S. 13. – [Link](#)
- [296] GATLAND, I. R. ; MORRISON, W. F. ; ELLIS, H. W. ; THACKSTON, M. G. ; MCDANIEL, E. W. ; ALEXANDER, M. H. ; VIEHLAND, L. A. ; MASON, E. A.: The Li(+)-He interaction potential. In: *J. Chem. Phys.* 66 (1977), S. 5121. – [Link](#)
- [297] VIEHLAND, L. A.: Interaction potentials for Li+-rare-gas systems. In: *Chemical Physics* 78 (1983), S. 279. – [Link](#)
- [298] POLAK-DINGELS, P. ; RAJAN, M. S. ; GISLASON, E. A.: Determination of lithium ion-rare gas potentials from total cross section measurements. In: *J. Chem. Phys.* 77 (1982), S. 3983. – [Link](#)
- [299] INOUE, H. ; KITA, S.: Elastic Scattering of Li+ Ions in Helium. In: *J. Chem. Phys.* 57 (1972), S. 1301–1303. – [Link](#)
- [300] GRAVIELLE, M. S. ; MIRAGLIA, J. E.: Influence of the polarization in grazing scattering of fast helium atoms from LiF(001) surfaces. In: *Phys. Rev. A* 78 (2008), S. 022901. – [Link](#)
- [301] GRAVIELLE, M. S. ; MIRAGLIA, J. E.: Quantum interference in grazing scattering of swift He atoms from LiF(001) surfaces: Surface eikonal approximation. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 267 (2009), S. 610. – [Link](#)
- [302] GRAVIELLE, M. S.: *persönliche Mitteilung*. – Departamento de Física, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad de Buenos Aires, Argentina
- [303] KIM, Y. S. ; GORDON, R. G.: Ion-rare gas interactions on the repulsive part of the potential curves. In: *J. Chem. Phys.* 60 (1974), S. 4323. – [Link](#)
- [304] PARTRIDGE, H. ; STALLCOP, J. R. ; LEVIN, E.: Potential energy curves and transport properties for the interaction of He with other ground-state atoms. In: *J. Chem. Phys.* 115 (2001), S. 6471. – [Link](#)
- [305] BEHMENBURG, W. ; MAKONNEN, A. ; KAISER, A. ; REBENTROST, F. ; STAEMMLER, V. ; JUNGEN, M. ; PEACH, G. ; DEVDARIANI, A. ; TSERKOVNYI, S. ; ZAGREBIN, A. ; CZUCHAJ, E.: Optical transitions in excited alkali + rare-gas collision molecules and related interatomic potentials:. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 29 (1996), S. 3891. – [Link](#)
- [306] SOLDÁN, P. ; LEE, E. P. F. ; LOZEILLE, J. ; MURRELL, J. N. ; WRIGHT, T. G.: High-quality interatomic potential for Li+ · He. In: *Chemical Physics Letters* 343 (2001), S. 429. – ISSN 0009–2614. – [Link](#)

- [307] CATLOW, G. W. ; MCDOWELL, M. R. C. ; KAUFMAN, J.J. ; SACHS, L. M. ; CHANG, E. S.: Elastic scattering of Li + by He. In: *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* 3 (1970), S. 833. – [Link](#)
- [308] MORRISON, W. F. ; AKRIDGE, G. R. ; ELLIS, H. W. ; PAI, R. Y. ; MCDANIEL, E. W. ; VIEHLAND, L. A. ; MASON, E. A.: Test of the Li[^{sup} +]-He interaction potential. In: *J. Chem. Phys.* 63 (1975), S. 2238. – [Link](#)
- [309] FISCHER, C. R.: He-Li(+) Interaction Energy at Small Internuclear Distances. In: *J. Chem. Phys.* 48 (1968), S. 215. – [Link](#)
- [310] SISK, P. E.: A modified Tang-Toennies model for ion-atom potential curves. In: *J. Chem. Phys.* 85 (1986), S. 7497. – [Link](#)
- [311] LLOYD, J. ; PUGH, D.: On the direct inclusion of polarization into an electron gas model for closed shell atom-ion interactions. In: *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2* 74 (1978), S. 32. – [Link](#)
- [312] HARIHARAN, P. C. ; STAEMMLER, V.: Potential energy curve of Li+/He. In: *Chemical Physics* 15 (1976), S. 409. – [Link](#)
- [313] ELFFORD, M. T. ; I., Røeggen ; SKULLERUD, H. R.: Interaction potential and transport coefficients for Li + ions in helium. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 32 (1999), S. 1873. – [Link](#)
- [314] SENFF, U. E. ; BURTON, P. G.: A CEPA2 investigation of the He-He and He-Li+ potential functions. In: *Molecular Physics* 58 (1986), S. 637. – [Link](#)
- [315] MENENDEZ, M. G. ; REDMON, M. J. ; AEBISCHER, J. F.: Interatomic Potential Model for Ion-Atom Systems Including a Charge-Exchange Contribution. In: *Phys. Rev.* 180 (1969), S. 69. – [Link](#)
- [316] TATEWAKI, H. ; TANAKA, K. ; OHNO, Y. ; NAKAMURA, T.: The interaction potentials for He-He and He-Li+. In: *Molecular Physics* 53 (1984), S. 233. – [Link](#)
- [317] KRAUSS, M. ; MALDONADO, P. ; WAHL, Arnold C.: Interaction Energy Curves of LiHe and NaHe (X[^{sup} 2] Sigma[^{sup} +], A[^{sup} 2] Pi, B[^{sup} 2] Sigma[^{sup} +]) and X[^{sup} 1] Sigma[^{sup} +] Ions. In: *J. Chem. Phys.* 54 (1971), S. 4944. – [Link](#)
- [318] DALGARNO, A. ; MCDOWELL, M. R. C. ; WILLIAMS, A.: The Mobilities of Ions in Unlike Gases. In: *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 250 (1958), S. 411. – [Link](#)
- [319] BASHIROV, E. M.: Determination of the interaction potential of the Li+-He system relative to the experimental differential cross sections. In: *Russian Physics Journal* 17 (1974), S. 297. – [Link](#)
- [320] OLSON, R. E. ; SMITH, F. T. ; MUELLER, C. R.: Determination of the Li(+)-He Interaction Potential from Low-Energy Experimental Differential Scattering Cross Sections. In: *Phys. Rev. A* 1 (1970), S. 27. – [Link](#)

- [321] ARCHIBONG, E. F. ; HU, C. ; THAKKAR, A. J.: Interaction potentials for He-F(-) and Ne-F(-). In: *J. Chem. Phys.* 109 (1998), S. 3072. – [Link](#)
- [322] DIERCKSEN, G. H. F. ; SADLEJ, A. J.: Interactions in the halide ion-rare gas systems: The F-...He interaction potential. In: *Chemical Physics* 131 (1989), S. 215–225. – [Link](#)
- [323] SIMPSON, R. W. ; MACLAGAN, R. G. A. R. ; HARLAND, P. W.: Ab initio calculation of the mobility of F- in helium. In: *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 20 (1987), S. 2723. – [Link](#)
- [324] MOSZYNSKI, R. ; JEZIORSKI, B. ; SZALEWICZ, K.: Many-body symmetry-adapted perturbation theory study of the He...F- interaction. In: *Chemical Physics* 166 (1992), S. 329. – [Link](#)
- [325] KIRKPATRICK, Charles C. ; VIEHLAND, Larry A.: Interaction potentials for the halide ion-rare gas systems. In: *Chemical Physics* 98 (1985), S. 221. – [Link](#)
- [326] JEWSBURY, P.: On the interpretation of rainbow scattering in gas atom/surface collisions. In: *Surface Science* 52 (1975), S. 325. – [Link](#)
- [327] KLEIN, James R. ; COLE, Milton W.: On the energy dependence of rainbow peaks in classical atom/surface scattering. In: *Surface Science* 81 (1979), S. L319. – [Link](#)
- [328] GOODMAN, F. O. ; LIU, W. S. ; CABRERA, N.: Model for the Repulsive Elastic Scattering of Atoms by Solid Surfaces. In: *J. Chem. Phys.* 57 (1972), S. 2698. – [Link](#)
- [329] SOLER, J. M. ; ARTACHO, E. ; GALE, J. D. ; GARCÍA, A. ; JUNQUERA, J. ; ORDEJÓN, P. ; SÁNCHEZ-PORTAL, D.: The SIESTA method for ab initio order-N materials simulation. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 14 (2002.), S. 2745. – [Link](#)
- [330] LISCHKA, H.: *Computer code COLUMBUS*. . – Release 5.9 (2006)
- [331] AIGNER, F.: *persönliche Mitteilung*. . – Technische Universität Wien, AG Burgdörfer
- [332] BENSON, G. C. ; CLAXTON, T. A.: Application of a Shell Model to the Calculation of the Surface Distortion in Alkali Halide Crystals. In: *J. Chem. Phys.* 48 (1968), S. 1356–1360. – [Link](#)
- [333] WELTON-COOK, M. R. ; PRUTTON, M.: A simple shell model calculation of differential ionic relaxations at the (100) surfaces of NaCl structure alkali halides. In: *Surface Science* 64 (1977), S. 633. – [Link](#)
- [334] ZHOU, J. B. ; LU, H. C. ; GUSTAFSSON, T. ; HÄBERLE, P.: Surface structure of MgO(001): a medium energy ion scattering study. In: *Surface Science* 302 (1994), S. 350. – [Link](#)
- [335] BENSON, G. C.: Recalculation of the Surface Energies of Alkali Halide Crystals. In: *J. Chem. Phys.* 35 (1961), S. 2113. – [Link](#)

- [336] WETTE, F. W. ; KRESS, W. ; SCHRÖDER, U.: Relaxation of the rocksalt (001) surface: Alkali halides, MgO, and PbS. In: *Phys. Rev. B* 32 (1985), S. 4143. – [Link](#)
- [337] LI, Bo: *persönliche Mitteilung*. . – Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, AG Michaelides / Scheffler
- [338] VOGT, J.: *Ultradünne molekulare Filme auf Isolatoreinkristalloberflächen - strukturelle und infrarotoptische Eigenschaften*, Habilitationsschrift, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Diss., 2008. <http://diglib.uni-magdeburg.de/Dissertationen/2008/jocvogt.pdf>
- [339] GONIAKOWSKI, J. ; NOGUERA, C.: Relaxation and rumpling mechanisms on oxide surfaces. In: *Surface Science* 323 (1995), S. 129. – [Link](#)
- [340] ALFONSO, D. R. ; SNYDER, J. A. ; JAFFE, J. E. ; HESS, A. C. ; GUTOWSKI, M.: Opposite rumpling of the MgO and CaO (100) surfaces: A density-functional theory study. In: *Phys. Rev. B* 62 (2000), S. 8318. – [Link](#)
- [341] BROQVIST, P. ; GRÖNBECK, H. ; PANAS, I.: Surface properties of alkaline earth metal oxides. In: *Surface Science* 554 (2004), S. 262. – [Link](#)
- [342] SKORODUMOVA, N. V. ; HERMANSSON, K. ; JOHANSSON, B.: Structural and electronic properties of the (100) surface and bulk of alkaline-earth metal oxides. In: *Phys. Rev. B* 72 (2005), S. 125414. – [Link](#)
- [343] STAEMMLER, V.: *interne Mitteilung*. . – Institut für Theoretische Chemie der Ruhr-Universität Bochum
- [344] RUIZ, A. ; PALAO, J. P. ; HELLER, E. J.: Classical and quantum analysis of quaresonance in grazing atom-surface collisions. In: *Phys. Rev. A* 79 (2009), S. 052901. – [Link](#)
- [345] SMITH, J. N. J. ; O'KEEFE, D. R. ; PALMER, R. L.: Rare-Gas Scattering from LiF: Correlation with Lattice Properties. II. In: *J. Chem. Phys.* 52 (1970), S. 315. – [Link](#)
- [346] KELLÖ, V. ; SADLEJ, A. J.: Interaction potentials in rare gas-halide ion systems. In: *Chemical Physics* 157 (1991), S. 123. – [Link](#)
- [347] LOZEILLE, J. ; WINATA, E. ; SOLDAN, P. ; LEE, E. P. F. ; VIEHLAND, L. A. ; WRIGHT, T. G.: Spectroscopy of Li+.Rg and Li+-Rg transport coefficients (Rg=He-Rn). In: *Physical Chemistry Chemical Physics* 4 (2002), S. 3601. – [Link](#)
- [348] BARAT, M. ; DHUICQ, D. ; FRANCOIS, R. ; SIDIS, V.: Elastic and inelastic scattering of Li + ions by rare gases (Ne, Ar, Kr, Xe). In: *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* 6 (1973), S. 2072. – [Link](#)
- [349] ROEGGEN, I. ; SKULLERUD, H. R.: The interatomic potential for the X 1 Sigma state of NeLi+. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 25 (1992), S. 1795. – [Link](#)

- [350] KOUTSELOS, A. D. ; MASON, E. A. ; VIEHLAND, L. A.: Interaction universality and scaling laws for interaction potentials between closed-shell atoms and ions. In: *J. Chem. Phys.* 93 (1990), S. 7125. – [Link](#)
- [351] SKULLERUD, H. R. ; I., Roeggen ; LOVAAS, T. H.: Mobility and diffusion of lithium ions in neon. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 25 (1992), S. 1811. – [Link](#)
- [352] INOUE, H. ; KITA, S.: Experimental Determination of the Repulsive Potentials between Li⁺ Ions and Rate-Gas Atoms. In: *J. Phys. Soc. Jpn.* 34 (1973), S. 1588. – [Link](#)
- [353] HECHT, T. ; AUTH, C. ; BORISOV, A. G. ; WINTER, H.: Suppression of Auger-neutralization in the scattering of noble gas ions from the surface of an insulator. In: *Physics Letters A* 220 (1996), S. 102. – [Link](#)
- [354] OLSON, R. E. ; LIU, B.: Interaction potential for the X1[Σ] state of Li⁺ + Ar. In: *Chemical Physics Letters* 62 (1979), S. 242. – [Link](#)
- [355] MCDOWELL, Sean A. C.: Interatomic potentials for ArLi⁺ obtained by SCF, MP2 and density functional theory. In: *Chemical Physics Letters* 266 (1997), S. 38. – [Link](#)
- [356] AHMADI, G. R. ; ROEGGEN, I.: The interatomic potential for the X 1 Σ state of ArLi⁺. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 27 (1994), S. 5603. – [Link](#)
- [357] GATLAND, I. R.: Ion mobility test of Li(+)-Ar potentials. In: *The Journal of Chemical Physics* 75 (1981), S. 4162. – [Link](#)
- [358] KOLODNEY, E. ; AMIRAV, A.: Energy dependence of diffractive and inelastic scattering of He and H₂ from MgO(100). In: *Surface Science* 155 (1985), S. 715. – [Link](#)
- [359] FAHSOLD, G. ; KÖNIG, G. ; THEIS, W. ; LEHMANN, A. ; RIEDER, K.-H.: Epitaxial FeO films from ultrathin Fe on MgO(001) studied by He-atom scattering. In: *Applied Surface Science* 137 (1999), S. 224. – [Link](#)
- [360] TRAEGER, F.: Helium Atom Scattering from Oxide Surfaces. In: *ChemPhysChem* 7 (2006), S. 1006. – [Link](#)
- [361] ZHAN, Q. ; HAESSENDONCK, C. van ; VANDEZANDE, S. ; TEMST, K.: Surface morphology and magnetic anisotropy of Fe/MgO(001) films deposited at oblique incidence. In: *Appl. Phys. Lett.* 94 (2009), S. 042504. – [Link](#)
- [362] REVENANT, C. ; RENAUD, G. ; LAZZARI, R. ; JUPILLE, J.: Defect-pinned nucleation, growth, and dynamic coalescence of Ag islands on MgO(001): An in situ grazing-incidence small-angle x-ray scattering study. In: *Phys. Rev. B* 79 (2009), S. 235424. – [Link](#)
- [363] CHAPON, C. ; HENRY, C. R. ; CHEMAM, A.: Formation and characterization of small Pd particles deposited on MgO as a model catalyst. In: *Surface Science* 162 (1985), S. 747. – [Link](#)

- [364] MOECKLY, B. H. ; RUSSEK, S. E. ; LATHROP, D. K. ; BUHRMAN, R. A. ; LI, Jian ; MAYER, J. W.: Growth of YBa₂Cu₃O₇ thin films on MgO: The effect of substrate preparation. In: *Appl. Phys. Lett.* 57 (1990), S. 1687. – [Link](#)
- [365] KINNIBURGH, C. G.: A LEED study of MgO(100). III. Theory at off-normal incidence. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 9 (1976), S. 2695. – [Link](#)
- [366] WELTON-COOK, M. R. ; BERNDT, W.: A LEED study of the MgO (100) surface: identification of a finite rumple. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 15 (1982), S. 5691. – [Link](#)
- [367] MARTIN, A. J. ; BILZ, H.: Charge deformation and geometric relaxation at the (001) MgO surface. In: *Phys. Rev. B* 19 (1979), S. 6593. – [Link](#)
- [368] PRUTTON, M. ; WALKER, J. A. ; WELTON-COOK, M. R. ; FELTON, R. C. ; RAMSEY, J. A.: LEED studies of the structures of the (100) surfaces of divalent metal oxides. In: *Surface Science* 89 (1979), S. 95. – [Link](#)
- [369] CAUSÀ, M. ; DOVESI, R. ; PISANI, C. ; ROETTI, C.: AB initio hartree-fock study of the MgO(001) surface. In: *Surface Science* 175 (1986), S. 551. – [Link](#)
- [370] FOWLER, P. W. ; TOLE, P.: Effects of coordination number on surface ions: an ab initio study of LiF and MgO. In: *Surface Science* 197 (1988), S. 457. – [Link](#)
- [371] SOUSA, C. ; MEJÍAS, J. A. ; PACCHIONI, G. ; ILLAS, F.: Role of surface heterogeneity in the chemical bond of MgO: ionic character of regular and defect surface sites. In: *Chemical Physics Letters* 249 (1996), S. 123. – [Link](#)
- [372] HENRICH, V. E.: The surfaces of metal oxides. In: *Reports on Progress in Physics* 48 (1985), S. 1481. – [Link](#)
- [373] BLAUTH, D.: *Streifende Streuung schneller Atome an Oberflächen von Metalloxid-Kristallen und ultradünnen Filmen*, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2009
- [374] NAKAMATSU, H. ; SUDO, A. ; KAWAI, S.: ICISS observation of MgO(100) surfaces with vacancies. In: *Surface Science* 223 (1989), S. 193. – [Link](#)
- [375] ROBACH, O. ; RENAUD, G. ; BARBIER, A.: Very-high-quality MgO(001) surfaces: roughness, rumpling and relaxation. In: *Surface Science* 401 (1998), S. 227. – [Link](#)
- [376] URANO, T. ; KANAJI, T. ; KABURAGI, M.: Surface structure of MgO(001) surface studied by LEED. In: *Surface Science* 134 (1983), S. 109. – [Link](#)
- [377] PANTELIDES, S. T. ; MICKISH, D. J. ; KUNZ, A. B.: Electronic structure and properties of magnesium oxide. In: *Phys. Rev. B* 10 (1974), S. 5203. – [Link](#)
- [378] EKINCI, Y. ; TOENNIES, J. P.: Elastic and rotationally inelastic diffraction of D[sub 2] molecules from the LiF(001) surface. In: *Phys. Rev. B* 72 (2005), S. 205430. – [Link](#)

- [379] SIERKA, M. ; WLODARCZYK, R.: *persönliche Mitteilung*. . – Humboldt-Universität zu Berlin, Inst. für Chemie, AG Sauer
- [380] YINNON, A. T. ; KOLODNEY, E. ; AMIRAV, A. ; GABER, R. B.: Atom-surface potentials by inversion of diffraction data: application to He/MgO(100). In: *Chemical Physics Letters* 123 (1986), S. 268. – [Link](#)
- [381] LUAÑA, V. ; RECIO, J. M. ; PUEYO, L.: Quantum-mechanical description of ions in crystals: Electronic structure of magnesium oxide. In: *Phys. Rev. B* 42 (1990), S. 1791. – [Link](#)
- [382] BARTH, C. ; HENRY, C. R.: Atomic Resolution Imaging of the (001) Surface of UHV Cleaved MgO by Dynamic Scanning Force Microscopy. In: *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), S. 196102. – [Link](#)
- [383] SANGSTER, M. J. L.: Interionic potentials and force constant models for rocksalt structure crystals. In: *J. Phys. Chem. Solids* 34 (1973), S. 355. – [Link](#)
- [384] KOHN, W. ; MEIR, Y. ; MAKAROV, D. E.: van der Waals Energies in Density Functional Theory. In: *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998), S. 4153. – [Link](#)
- [385] GRIMME, S.: Semiempirical GGA-Type Density Functional Constructed with a Long-Range Dispersion Correction. In: *Journal of Computational Chemistry* 27 (2006), S. 1787. – [Link](#)
- [386] SILVESTRELLI, P. L. ; BENYAHIA, K. ; GRUBISIC, S. ; ANCILOTTO, F. ; TOIGO, F.: Van der Waals interactions at surfaces by density functional theory using Wannier functions. In: *J. Chem. Phys.* 130 (2009), S. 074702. – [Link](#)
- [387] BLANCHARD, D. L. ; LESSOR, D. L. ; LAFEMINA, J. P. ; BAER, D. R. ; FORD, W. K. ; GUO, T.: A low-energy electron diffraction study of the MgO(001) surface structure. In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 9 (1991), S. 1814. – [Link](#)
- [388] FERRY, D. ; SUZANNE, J. ; PANELLA, V. ; BARBIERI, A. ; HOVE, M. A. ; BIBERIAN, J.-P.: MgO(100) surface relaxation by symmetrized automated tensor low energy electron diffraction analysis. In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 16 (1998), S. 2261. – [Link](#)
- [389] GOTOH, T. ; MURAKAMI, S. ; KINOSITA, K. ; MURATA, Y.: Surface Rumpling Of Mgo(001) Deduced From Changes In Rheed Kikuchi Pattern .1. Experimental. In: *J. Phys. Soc. Jpn.* 50 (1981), S. 2063. – [Link](#)
- [390] NAKAMATSU, H. ; SUDO, A. ; KAWAI, S.: Relaxation of the MgO(100) surface studied by ICISS. In: *Surface Science* 194 (1988), S. 265. – [Link](#)
- [391] PUGH, S. ; GILLAN, M. J.: The energetics of NH₃ adsorption at the MgO(001) surface. In: *Surface Science* 320 (1994), S. 331. – [Link](#)
- [392] LI, Y. ; LANGRETH, D. C. ; PEDERSON, M. R.: Surface structure of MgO (001): Ab initio versus shell model. In: *Phys. Rev. B* 55 (1997), S. 16456. – [Link](#)

- [393] MUSOLINO, V. ; SELLONI, A. ; CAR, R.: First principles study of adsorbed Cu[sub n] (n = 1–4) microclusters on MgO(100): Structural and electronic properties. In: *J. Chem. Phys.* 108 (1998), S. 5044. – [Link](#)
- [394] FINOCCHI, F. ; GONIAKOWSKI, J. ; NOGUERA, C.: Interaction between oxygen vacancies on MgO(100). In: *Phys. Rev. B* 59 (1999), S. 5178. – [Link](#)
- [395] YAN, Y. ; CHISHOLM, M. F. ; PENNYCOOK, S. J. ; PANTELIDES, S. T.: Structures of pure and Ca-segregated MgO (001) surfaces. In: *Surface Science* 442 (1999), S. 251. – [Link](#)
- [396] XU, Y. ; LI, J. ; ZHANG, Y. ; CHEN, W.: CO adsorption on MgO(0 0 1) surface with oxygen vacancy and its low-coordinated surface sites: embedded cluster model density functional study employing charge self-consistent technique. In: *Surface Science* 525 (2003), S. 13. – [Link](#)
- [397] QUINTANAR, C. ; CABALLERO, R. ; CASTAÑO, V. M.: Adsorption of CO on the rumpled MgO(100), MgO(100):Ni, and MgO(100):Cr surfaces: A density functional approach. In: *International Journal of Quantum Chemistry* 102 (2005), S. 820. – [Link](#)
- [398] WELTON-COOK, M. R. ; PRUTTON, M.: A simple shell model calculation of the differential ionic relaxation of the MgO(100) surface. In: *Surface Science* 74 (1978), S. 276. – [Link](#)
- [399] COLBOURN, E. A. ; MACKRODT, W. C.: Irregularities at the 001 surface of MgO: Topography and other aspects. In: *Solid State Ionics* 8 (1983), S. 221. – [Link](#)
- [400] LEWIS, G. V. ; CATLOW, C. R. A.: Potential models for ionic oxides. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 18 (1985), S. 1149. – [Link](#)
- [401] BARNETT, R. N. ; BASS, Ronald: Calculation of strain and polarization fields at the surface of MgO crystals. Breathing shell model. In: *J. Chem. Phys.* 67 (1977), S. 4620. – [Link](#)
- [402] BARNETT, R. N. ; BASS, Ronald: Erratum: Calculation of strain and polarization fields at the surface of MgO crystals. Breathing shell model. In: *J. Chem. Phys.* 71 (1979), S. 1514. – [Link](#)
- [403] TASKER, P. W. ; DUFFY, D. M.: The structure and properties of the stepped surfaces of MgO and NiO. In: *Surface Science* 137 (1984), S. 91. – [Link](#)
- [404] MACKRODT, W. C.: Atomistic Simulation Of The Surfaces Of Oxides. In: *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2* 85 (1989), S. 541. – [Link](#)
- [405] LAFEMINA, J. P. ; DUKE, C. B.: Dependence of oxide surface structure on surface topology and local chemical bonding. In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 9 (1991), S. 1847. – [Link](#)
- [406] PACCHIONI, G. ; MINERVA, T. ; BAGUS, P. S.: Chemisorption of CO on defect sites of MgO. In: *Surface Science* 275 (1992), S. 450. – [Link](#)

- [407] PALMER, R. L. ; O'KEEFE, D. R. ; SALTSBURG, H. ; J. N. SMITH, Jr.: Experimental Attempt to Observe Helium Atom Diffraction from (001) Silver. In: *J. Vac. Sci. Technol.* 7 (1970), S. 91. – [Link](#)
- [408] STOLL, A. G. ; SMITH, D. L. ; MERRILL, R. P.: Scattering of the Rare Gases (He, Ne, Ar, Kr, and Xe) from Platinum (111) Surfaces. In: *J. Chem. Phys.* 54 (1971), S. 163. – [Link](#)
- [409] TENDULKAR, D. V. ; STICKNEY, R. E.: Diffraction of helium atoms from a tungsten (112) crystal surface. In: *Surface Science* 27 (1971), S. 516. – [Link](#)
- [410] WEINBERG, W. H. ; MERRILL, R. P.: Atomic and Molecular Diffraction of Helium and Deuterium from a Tungsten Carbide Surface Characterized by Low-Energy Electron Diffraction. In: *Phys. Rev. Lett.* 25 (1970), S. 1198. – [Link](#)
- [411] WEINBERG, W. H. ; MERRILL, R. P.: Atomic and Molecular Diffraction and Scattering from a Tungsten Carbide Surface Characterized by LEED. In: *J. Chem. Phys.* 56 (1972), S. 2893. – [Link](#)
- [412] STOLL, A. G. J. ; WHITE, R. E. ; EHRHARDT, J. J. ; MASEL, R. I. ; MERRILL, R. P.: Scattering of light atoms from strongly periodic surfaces. In: *J. Vac. Sci. Technol.* 12 (1975), S. 192. – [Link](#)
- [413] FEIDENHANS'L, R. ; SØRENSEN, J. E. ; STENSGAARD, I.: Surface relaxation of Ni(110) investigated by high energy ion scattering. In: *Surface Science* 134 (1983), S. 329. – [Link](#)
- [414] JACKSON, D. P.: Approximate calculation of surface Debye temperatures. In: *Surface Science* 43 (1974), S. 431. – [Link](#)
- [415] RIEDER, K. H. ; ENGEL, T.: Atomic beam diffraction from solid surfaces. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* 170 (1980), S. 483. – [Link](#)
- [416] GORSE, D. ; SALANON, B. ; FABRE, F. ; KARA, A. ; PERREAU, J. ; ARMAND, G. ; LAPUJOLADE, J.: Diffraction of helium from Cu(110), (113), (115) and (117); Interaction potential and surface crystallography. In: *Surface Science* 147 (1984), S. 611. – [Link](#)
- [417] DONDI, M. G. ; TERRENI, S. ; TOMMASINI, F. ; LINKE, U.: Electron density at the Ag(110) surface studied by He diffraction. In: *Phys. Rev. B* 37 (1988), S. 8034. – [Link](#)
- [418] FARÍAS, D. ; DÍAZ, C. ; RIVIÈRE, P. ; BUSNENGO, H. F. ; NIETO, P. ; SOMERS, M. F. ; KROES, G. J. ; SALIN, A. ; MARTÍN, F.: In-Plane and Out-of-Plane Diffraction of H₂ from Metal Surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), S. 246104. – [Link](#)
- [419] RIEDER, K. H. ; ENGEL, T.: Structural Investigation of an Adsorbate-Covered Surface with He Diffraction: Ni(110)+(1 × 2)H. In: *Phys. Rev. Lett.* 43 (1979), S. 373. – [Link](#)

- [420] SAU, R. ; MERRILL, R. P.: The scattering of hydrogen, deuterium, and the rare gases from silver (111) single crystals. In: *Surface Science* 34 (1973), S. 268. – [Link](#)
- [421] MASON, B. F. ; WILLIAMS, B. R.: Scattering of he and ne atoms from (001) Cu at 20 K. In: *Surface Science* 75 (1978), S. L786. – [Link](#)
- [422] LAPUJOLADE, J. ; LEJAY, Y.: The scattering of noble gas atoms (He, Ne, Ar) from (100) copper. (Space and velocity distribution). In: *J. Chem. Phys.* 63 (1975), S. 1389. – [Link](#)
- [423] RIEDER, K.H. ; WILSCH, H.: Helium diffraction from Ni(100): A study of the clean surface and of hydrogen and carbon adsorption phases. In: *Surface Science* 131 (1983), S. 245. – [Link](#)
- [424] BOATO, G. ; CANTINI, P. ; TATAREK, R.: Diffraction of He and H₂ molecular beams from a low temperature metal surface. In: *J. Phys. F: Metal Phys.* 6 (1976), S. L237. – [Link](#)
- [425] HORNE, J. M. ; YERKES, S. C. ; MILLER, D. R.: An experimental investigation of the elastic scattering of He and H₂ from Ag(111). In: *Surface Science* 93 (1980), S. 47. – [Link](#)
- [426] MIRET-ARTES, S. ; TOENNIES, J. P. ; WITTE, G.: Surface-scattering study of the interaction potential of He atoms with the step edges of the Cu(211) and Cu(511) vicinal surfaces. In: *Phys. Rev. B* 54 (1996), S. 5881. – [Link](#)
- [427] KAUFMAN, D. S. ; ATEN, R. M. ; CONRAD, E. H. ; ALLEN, L. R. ; ENGEL, T.: A helium diffraction study of the structure of the Ni(115) surface. In: *J. Chem. Phys.* 86 (1987), S. 3682. – [Link](#)
- [428] RIEDER, K. H.: Diffraction of He and Ne from Ni(113): A comparative study. In: *Phys. Rev. B* 39 (1989), S. 10708. – [Link](#)
- [429] APEL, R. ; FARÍAS, D. ; TRÖGER, H. ; RIEDER, K. H.: He-diffraction studies of hydrogen chemisorption on rhodium (311). In: *Surface Science* 331-333 (1995), S. 57. – [Link](#)
- [430] FARÍAS, D. ; PATTING, M. ; RIEDER, K.-H. ; MANSON, J. R.: Scattering of He atoms from surface defects by grazing-angle diffraction beams. In: *Phys. Rev. B* 65 (2002), S. 165435. – [Link](#)
- [431] PERREAU, J. ; LAPUJOLADE, J.: Selective adsorption of He, H₂ on copper surfaces. In: *Surface Science* 122 (1982), S. 341. – [Link](#)
- [432] LAPUJOLADE, J. ; LEJAY, Y.: The diffraction of helium from an ordered stepped surface: Cu(117). In: *Surface Science* 69 (1977), S. 354. – [Link](#)
- [433] LAPUJOLADE, J. ; LEJAY, Y. ; PAPANICOLAOU, N.: Diffraction of helium from a stepped surface: Cu(117) – An experimental study. In: *Surface Science* 90 (1979), S. 133. – [Link](#)

- [434] GUO, X.-C. ; HOPKINSON, A. ; BRADLEY, J. M. ; KING, D. A.: Corrugation of the reconstructed Pt100 surface: a helium diffraction study. In: *Surface Science* 278 (1992), S. 263. – [Link](#)
- [435] ENGEL, T. ; WEARE, J. H.: A neon scattering study of the structure of the reconstructed Au(110) surface. In: *Surface Science* 164 (1985), S. 403. – [Link](#)
- [436] CORTONA, P. ; DONDI, M. G. ; CVETKO, D. ; LAUSI, A. ; MORGANTE, A. ; PRINCE, K. C. ; TOMMASINI, F.: Electron density and structure of the (1x2)-Au(110) surface studied by He-beam scattering. In: *Phys. Rev. B* 47 (1993), S. 6705. – [Link](#)
- [437] NDUWIMANA, A. ; GONG, X. G. ; WANG, X. Q.: Relative stability of missing-row reconstructed (1 1 0) surfaces of noble metals. In: *Applied Surface Science* 219 (2003), S. 129. – [Link](#)
- [438] CHAN, C.-M. ; VAN HOVE, M. A. ; WEINBERG, W. H. ; WILLIAMS, E. D.: An R-factor analysis of several models of the reconstructed Ir(110)-(1x2) surface a. In: *Surface Science* 91 (1980), S. 440. – [Link](#)
- [439] BARNES, C.J. ; DING, M.Q. ; LINDROOS, M. ; DIEHL, R.D. ; KING, D.A.: A LEED structural study of the Pd110-(1x1) surface and an alkali-metal-induced (1x2) surface reconstruction. In: *Surface Science* 162 (1985), S. 59. – [Link](#)
- [440] HAYWARD, D. O. ; TAYLOR, A. O.: The diffraction of deuterium and helium from Ni(111) surfaces. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 19 (1986), S. L309. – [Link](#)
- [441] BUSCH, M. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Reexamination of local spin polarization at surfaces probed by hollow atoms. In: *Phys. Rev. A* 78 (2008), S. 010901. – [Link](#)
- [442] BECKMANN, H.-O. ; WHITTEN, J. L. ; BATRA, I. P.: AB initio studies of He—Ni and He—Cu interaction potentials. In: *Surface Science* 156 (1985), S. 670. – [Link](#)
- [443] ADAMS, D. L. ; PETERSEN, L. E. ; SORENSEN, C. S.: Oscillatory relaxation of the Ni(110) surface: a LEED study. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 18 (1985), S. 1753. – [Link](#)
- [444] WETHEKAM, S. ; BUSCH, M. ; WINTER, H.: Formation of doubly excited He atoms during scattering of He²⁺ ions from a clean and oxygen covered Ni(1 1 0) surface. In: *Surface Science* 603 (2009), S. 209. – [Link](#)
- [445] BUSCH, M. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Effect of adsorbates on the formation of doubly excited He atoms during impact of He²⁺ ions on a Ni(1 1 0) surface. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 267 (2009), S. 2625. – [Link](#)
- [446] GRUNDMANN, H.: *Klassische und quantenmechanische Regenbögen bei der streifenden Streuung schneller Atome und Moleküle an der sauberen und sauerstoffbedeckten Ni(110)-Oberfläche*, Diplomarbeit, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2009

- [447] DRAKOVA, D. ; DOYEN, G. ; TRENTINI, F. v.: Self-consistent calculations of rare-gas-transition-metal interaction potentials. In: *Phys. Rev. B* 32 (1985), S. 6399. – [Link](#)
- [448] ANNETT, J. F. ; HAYDOCK, R.: Anticorrugating Effect of Hybridization on the Helium Diffraction Potential for Metal Surfaces. In: *Phys. Rev. Lett.* 53 (1984), S. 838. – [Link](#)
- [449] ANNETT, J. F. ; HAYDOCK, R.: Helium diffraction from metal surfaces: Elimination of a class of potentials. In: *Phys. Rev. B* 29 (1984), S. 3773. – [Link](#)
- [450] WINTER, H.: Kinetic Electron Emission for Grazing Scattering of Atoms and Ions from Surfaces. In: *Springer Tracts in Modern Physics* 225 (2007), S. 113. – [Link](#)
- [451] RITZAU, S. M. ; BARAGIOLA, R. A. ; MONREAL, R. C.: Proton-induced kinetic plasmon excitation in Al and Mg. In: *Phys. Rev. B* 59 (1999), S. 15506. – [Link](#)
- [452] EIERDAL, L. ; BESENBACHER, F. ; LAEGSGAARD, E. ; STENSGAARD, I.: Interaction of oxygen with Ni(110) studied by scanning tunneling microscopy. In: *Surface Science* 312 (1994), S. 31. – [Link](#)
- [453] KINDT, J. T. ; TULLY, J. C.: Simulations of collision-induced absorption of hydrogen on Ni(111). In: *J. Chem. Phys.* 111 (1999), S. 11060. – [Link](#)
- [454] SUN, L. ; PETERSON, K. A. ; ALEXEEV, Y. ; WINDUS, T. ; KINDT, J. ; HASE, W. L.: Effect of the Ar-Ni(s) potential on the cross section for Ar + CH₄/Ni111 collision-induced desorption and the need for a more accurate CH₄/Ni111 potential. In: *J. Chem. Phys.* 122 (2005), S. 044704. – [Link](#)
- [455] KAROLEWSKI, M. A.: Repulsive interatomic potentials for noble gas bombardment of Cu and Ni targets. In: *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 243 (2006), S. 43. – [Link](#)
- [456] CHIRITA, V. ; PAILTHORPE, B. A. ; COLLINS, R. E.: Molecular dynamics study of low-energy Ar scattering by the Ni(001) surface. In: *J. Phys. D: Appl. Phys.* 26 (1993), S. 133. – [Link](#)
- [457] WATSON, P. R.: Critical Compilation of Surface Structures Determined by Low-Energy Electron Diffraction Crystallography. In: *J. Phys. Chem. Ref. Data* 16 (1987), S. 953. – [Link](#)
- [458] RAMSIER, R. D. ; YATES, J. T.: Electron-stimulated desorption: Principles and applications. In: *Surface Science Reports* 12 (1991), S. 246. – [Link](#)
- [459] FARADZHEV, N. S. ; KOSTOV, K. L. ; FEULNER, P. ; MADEY, T. E. ; MENZEL, D.: Stability of water monolayers on Ru(0001): Thermal and electronically induced dissociation. In: *Chemical Physics Letters* 415 (2005), S. 165. – [Link](#)

- [460] TOKUTAKA, H. ; PRUTTON, M. ; HIGGINBOTHAM, I. G. ; GALLON, T. E.: The (100) surfaces of alkali halides : II. Electron stimulated dissociation. In: *Surface Science* 21 (1970), S. 233. – [Link](#)
- [461] TOENNIES, J. P. ; TRAEGER, F. ; VOGT, J. ; WEISS, H.: Low-energy electron induced restructuring of water monolayers on NaCl(100). In: *J. Chem. Phys.* 120 (2004), S. 11347. – [Link](#)
- [462] VOGT, J.: *Strukturuntersuchungen an reinen und adsorbatbedeckten NaCl-, KCl-, KBr- und LiF-Einkristalloberflächen mittels Beugung langsamer Elektronen und Fourier-Transform-Infrarotspektroskopie*, Universität Hannover, Diss., 2001. – [Link](#)
- [463] HARNETT, J. ; HAQ, S. ; HODGSON, A.: Electron induced restructuring of crystalline ice adsorbed on Pt(111). In: *Surface Science* 528 (2003), S. 15–19. – [Link](#)
- [464] LEYGRAF, C. ; EKELUND, S.: A LEED-AES study of the oxidation of Fe (110) and Fe (100). In: *Surface Science* 40 (1973), S. 609. – [Link](#)
- [465] SHIH, H. D. ; JONA, F. ; U., Bardi ; MARCUS, P. M.: The atomic structure of Fe(110). In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 13 (1980), S. 3801. – [Link](#)
- [466] BLONSKI, P. ; KIEJNA, A. ; HAFNER, J.: Oxygen adsorption on the clean and O-precovered Fe (110) and (100) surfaces. In: *J. Phys.: Condensed Matter* 19 (2007), S. 096011. – [Link](#)
- [467] KELEMEN, S. R. ; KALDOR, A.: The interaction of surface sulfur with carbon on Fe(110). In: *J. Chem. Phys.* 75 (1981), S. 1530. – [Link](#)
- [468] WEISSENRIEDER, J. ; GOTHELID, M. ; LE LAY, G. ; KARLSSON, U. O.: Investigation of the surface phase diagram of Fe(1 1 0)-S. In: *Surface Science* 515 (2002), S. 135. – [Link](#)
- [469] BERBIL-BAUTISTA, L. ; KRAUSE, S. ; HANKE, T. ; BODE, M. ; WIESENDANGER, R.: Spin-polarized scanning tunneling microscopy through an adsorbate layer: Sulfur-covered Fe/W(1 1 0). In: *Surface Science* 600 (2006), S. L20. – [Link](#)
- [470] PIGNOCCO, A.J. ; PELLISSIER, G.E.: Leed studies of oxygen adsorption and oxide formation on an (011) iron surface. In: *Surface Science* 7 (1967), S. 261. – [Link](#)
- [471] MELMED, A. J. ; CARROLL, J. J.: Oxidation of (011) Iron at Room Temperature: Mainly LEED Aspects. In: *J. Vac. Sci. Technol.* 10 (1973), S. 164. – [Link](#)
- [472] ERLEY, W. ; IBACH, H.: Vibrational excitations and structure of oxygen on Fe(110). In: *Solid State Communications* 37 (1981), S. 937. – [Link](#)
- [473] SAKISAKA, Y. ; KOMEDA, T. ; MIYANO, T. ; ONCHI, M. ; MASUDA, S. ; HARADA, Y. ; YAGI, K. ; KATO, H.: Angle-resolved photoemission of the c(2x2) and c(3x1) oxygen overlayers on Fe(110). In: *Surface Science* 164 (1985), S. 220. – [Link](#)

- [474] MIYANO, T. ; SAKISAKA, Y. ; KOMEDA, T. ; ONCHI, M.: Electron energy-loss spectroscopy study of oxygen chemisorption and initial oxidation of Fe(110). In: *Surface Science* 169 (1986), S. 197. – [Link](#)
- [475] WIGHT, A. ; CONDON, N. G. ; LEIBSLE, F. M. ; WORTHY, G. ; HODGSON, A.: Initial stages of Fe(110) oxidation at 300 K: kinetics and structure. In: *Surface Science* 331-333 (1995), S. 133. – [Link](#)
- [476] KIM, H.-J. ; VESCOVO, E.: Spin-resolved photoemission investigation of the c(2x2) and c(3x1) oxygen overlayers on the Fe(110) surface. In: *Phys. Rev. B* 58 (1998), S. 14047. – [Link](#)
- [477] BUSCH, M. ; GRUYTERS, M. ; WINTER, H.: Spin polarization and structure of molecular oxygen adsorbed on Fe(1 1 0). In: *Surface Science* 600 (2006), S. 4598. – [Link](#)
- [478] SPENCER, M. J. S. ; HUNG, A. ; SNOOK, I. K. ; YAROVSKY, I.: Sulfur adsorption on Fe(1 1 0): a DFT study. In: *Surface Science* 540 (2003), S. 420. – [Link](#)
- [479] SPENCER, M. J. S. ; SNOOK, I. K. ; YAROVSKY, I.: Coverage-Dependent Adsorption of Atomic Sulfur on Fe(110): A DFT Study. In: *J. Phys. Chem. B* 109 (2005), S. 9604. – [Link](#)
- [480] SPENCER, M.J.S. ; SNOOK, I.K. ; YAROVSKY, I.: Effect of S Arrangement on Fe(110) Properties at 1/3 Monolayer Coverage: A DFT Study. In: *J. Phys. Chem. B* 110 (2006), S. 956. – [Link](#)
- [481] BLONSKI, P. ; KIEJNA, A. ; HAFNER, J.: Theoretical study of oxygen adsorption at the Fe(1 1 0) and (1 0 0) surfaces. In: *Surface Science* 590 (2005), S. 88. – [Link](#)
- [482] BLONSKI, P. ; KIEJNA, A. ; HAFNER, J.: Dissociative adsorption of O₂ molecules on O-precovered Fe(110) and Fe(100): Density-functional calculations. In: *Phys. Rev. B* 77 (2008), S. 155424. – [Link](#)
- [483] GAFNER, G. ; FEDER, R.: A low-energy electron diffraction study of Fe(110) : I. Experimental. In: *Surface Science* 57 (1976), S. 37. – [Link](#)
- [484] CABIBIL, H. ; LIN, J.-S. ; KELBER, J. A.: Scanning tunneling microscopy atomic resolution images of sulfur overlayers on Fe(111). In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 16 (1998), S. 30. – [Link](#)
- [485] GROSS, G. ; RIEDER, K. H.: He-diffraction investigations of the (2x2)-phases of oxygen and hydrogen on Ni(111). In: *Surface Science* 241 (1991), S. 33. – [Link](#)
- [486] VIGGIANO, A. A. ; MORRIS, Robert A. ; MASON, E. A.: Mobilities and interaction potentials for the O(+)-He and O(-)-He systems. In: *J. Chem. Phys.* 98 (1993), S. 6483. – [Link](#)

- [487] OGLETREE, D. F. ; OCAL, C. ; MARCHON, B. ; SOMORJAI, G. A. ; SALMERON, M. ; BEEBE, T. ; SIEKHAUS, W.: Scanning tunneling microscopy study of the structure of sulfur overlayer on rhenium (0001). In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 8 (1990), S. 297. – [Link](#)
- [488] SEIFERT, J. ; SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; WŁODARCZYK, R. ; SAUER, J. ; SIERKA, M.: Diffraction of fast atoms during grazing scattering from the surface of an ultrathin silica film on Mo(112). In: *Phys. Rev. B* 82 (2010), S. 035436. – [Link](#)

Publikationen des Autors

Im Folgenden sind die Publikationen des Autors in internationalen „peer-reviewed“ Fachzeitschriften zusammengestellt.

1. SCHÜLLER, A. ; ADAMOV, G. ; WETHEKAM, S. ; MAASS, K. ; MERTENS, A. ; WINTER, H.: Dynamic dependence of interaction potentials for keV atoms at metal surfaces. In: *Physical Review A* 69 (2004), S. 050901(R). – [Link](#)
2. SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; MERTENS, A. ; MAASS, K. ; WINTER, H. ; GÄRTNER, K.: Interatomic potentials from rainbow scattering of keV noble gas atoms under axial surface channeling. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 230 (2005), S. 172. – [Link](#)
3. WINTER, H. ; SCHÜLLER, A.: Rainbow scattering under axial surface channeling. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 232 (2005), S. 165. – [Link](#)
4. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Interaction potentials for Na, Al and Ar atoms from rainbow scattering under axial surface channeling from Al(111) and Al(001) surfaces. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 256 (2007), S. 122. – [Link](#)
5. SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Diffraction of Fast Atomic Projectiles during Grazing Scattering from a LiF(001) Surface. In: *Physical Review Letters* 98 (2007), S. 016103. – [Link](#)
6. WETHEKAM, S. ; SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Grazing scattering of fast C_{60}^+ ions from an Al(001) surface under axial surface channeling. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 258 (2007), S. 68. – [Link](#)
7. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Interatomic potentials between noble gas and Ag atoms from axial surface channeling. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 261 (2007), S. 578. – [Link](#)

8. SCHÜLLER, A. ; GÄRTNER, K. ; WINTER, H.: Interaction potential for fast Ne atoms in front of LiF(001) surface. In: *Europhysics Letters* 81 (2008), S. 37007. – [Link](#)
9. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Supernumerary Rainbows in the Angular Distribution of Scattered Projectiles for Grazing Collisions of Fast Atoms with a LiF(001) Surface. In: *Physical Review Letters* 100 (2008), S. 097602. – [Link](#)
10. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Diffraction of fast atoms under axial surface channeling conditions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 267 (2009), S. 628. – [Link](#)
11. BUSCH, M. ; SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Fast atom diffraction at metal surface. In: *Surface Science* 603 (2009), S. L23. – [Link](#)
12. SCHÜLLER, A. ; BUSCH, M. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Fast Atom Diffraction from Superstructures on a Fe(110) Surface. In: *Physical Review Letters* 102 (2009), S. 017602. – [Link](#)
13. WINTER, H. ; SEIFERT, J. ; BLAUTH, D. ; BUSCH, M. ; SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S.: Structure of ultrathin oxide layers on metal surfaces from grazing scattering of fast atoms. In: *Applied Surface Science* 256 (2009), S. 365. – [Link](#)
14. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Dynamic dependence of the interaction potentials for grazing scattering of fast atoms from metal and insulator surfaces. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 267 (2009), S. 2621. – [Link](#)
15. SCHÜLLER, A. ; BUSCH, M. ; SEIFERT, J. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H. ; GÄRTNER, K.: Superstructures of oxygen and sulphur on a Fe(110) surface via fast atom diffraction. In: *Physical Review B* 79 (2009), S. 235425. – [Link](#)
16. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; GRAVIELLE, M. S. ; PRUNEDA, J. M. ; MIRAGLIA, J. E.: He-LiF surface interaction potential from fast atom diffraction. In: *Physical Review A* 80 (2009), S. 062903. – [Link](#)
17. SEIFERT, J. ; BUSCH, M. ; SCHÜLLER, A. ; BLAUTH, D. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Structure of ultrathin silica films on Mo(112) studied via classical and quantum mechanical rainbow scattering of fast atoms. In: *Surface and Interface Analysis* 42 (2010) – [Link](#)

18. SEIFERT, J. ; SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; WŁODARCZYK, R. ; SAUER, J. ; SIERKA, M.: Diffraction of fast atoms during grazing scattering from the surface of an ultrathin silica film on Mo(112). In: *Physical Review B* 82 (2010), S. 035436 – [Link](#)
19. TIWALD, P. ; SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; TÖKESI, K. ; AIGNER, F. ; GRÄFE, S. ; LEMELL, C. ; BURGDÖRFER, J.: Interaction potentials for fast atoms in front of Al surfaces probed by rainbow scattering. In: *Physical Review B* im Druck (2010)
20. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; WETHEKAM S. ; BLAUTH, D. ; WINTER, H. ; AIGNER, F. ; SIMONOVIC, N. ; SOLLEDER, B. ; BURGDÖRFER, J. ; WIRTZ, L.: Rumpling of the LiF(001) surface from Fast Atom Diffraction. In: *Physical Review A* zur Veröffentlichung eingereicht

Konferenzbeiträge des Autors

Im Folgenden sind Konferenzbeiträge des Autors zusammengestellt.
Der präsentierende Autor ist jeweils unterstrichen.

1. SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; ADAMOV, G. ; MERTENS, A. ; MAASS, K. ; WINTER, H. ; GÄRTNER, K.: Interatomic potentials from rainbow scattering of keV atoms under axial surface channeling. Poster, *21st International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS-21)*, Genua, Italien (2004)
2. SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Rainbow scattering of keV atoms under axial surface channeling. Vortrag, *24th Werner Brandt Workshop (WBW-24)*, Berlin (2004)
3. SCHÜLLER, A. ; ADAMOV, G. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Rainbow scattering of keV atoms under surface channeling. Vortrag, *15th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (IISC-15)*, Ise-Shima, Japan (2004)
4. SCHÜLLER, A. ; GÄRTNER, K. ; WINTER, H.: Untersuchung des interatomaren Wechselwirkungspotentials bei axialer Oberflächengitterführung schneller Atome. Vortrag, *Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, Berlin (2005)
5. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Interaction potentials for Na, Al, and Ar atoms from rainbow scattering under axial surface channeling from Al(111) and Al(001) surfaces. Poster, *22nd International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS-22)*, Berlin (2006)
6. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Interaction potentials for Na, Al, and Ar atoms from rainbow scattering under axial surface channeling from Al(111) and Al(001) surfaces. Vortrag, *19th International Conference on The Application of Accelerators in Research and Industry (CAARI-19)*, Fort Worth, TX, USA (2006)

7. WETHEKAM, S. ; SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Grazing scattering of C_{60} ions from an Al(001) surface. Poster, *16th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (IISC-16)*, Hernstein, Österreich (2006)
8. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Interatomic potentials at surfaces from rainbow scattering and atom diffraction. Poster, *1st IMPRS-CS workshop*, Ringberg Castle (2007)
9. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H. ; GÄRTNER, K.: Interatomic potentials at surfaces from rainbow scattering and atom diffraction. Vortrag, *4th International Workshop on High-Resolution Depth Profiling*, Radebeul (2007)
10. SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Diffraction of fast atoms and molecules during grazing scattering from a LiF(001) surface. Poster, *25th International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC-25)*, Freiburg (2007)
11. SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Diffraction of fast atoms and molecules during grazing scattering from a LiF(001) surface. Poster, *Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, Berlin (2008)
12. SCHÜLLER, A. ; WINTER, H.: Dynamic dependence of the interaction potential for grazing scattering of fast atoms from an Al(001) and LiF(001) surface. Poster, *23rd International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS-23)*, Phalaborwa, Südafrika (2008)
13. SCHÜLLER, A. ; BUSCH, M. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Diffraction of fast atoms and molecules during grazing scattering from surfaces. Vortrag, *17th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (IISC-17)*, Porquerolles, Frankreich (2008)
14. SEIFERT, J. ; BLAUTH, D. ; SCHÜLLER, A. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H. : Structure determination of monolayer silica on Mo(112) via grazing scattering of fast atoms. Poster, *4th ITS-LEIF Annual Meeting*, Girona, Spanien (2009)
15. SCHÜLLER, A. ; BUSCH, M. ; SEIFERT, J. ; WETHEKAM, S. ; WINTER, H.: Diffraction of fast atoms and molecules during grazing scattering from surfaces. Poster, *26th International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC-26)*, Kalamazoo, MI, USA, (2009)

Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Dr. H. Winter für die Möglichkeit, diese Arbeit am Lehrstuhl „Physik der Grenzflächen und dünnen Schichten“ am Institut für Physik der Humboldt-Universität zu Berlin durchzuführen, für seine Anregungen und Ideen, für die intensive Betreuung und insbesondere dafür, dass er jederzeit für einen Gedankenaustausch zur Verfügung stand. Ich konnte sehr von seiner Erfahrung profitieren.

Mein Dank gilt Herrn Dr. A. Mertens, der mich während meines Studiums für die Experimente mit Ionen- und Atom-Strahlen begeistert hat und bei dem ich als studentische Hilfskraft sowie als Diplomand die systematische und vorausschauende Arbeitsweise eines Experimentalphysikers erlernt habe.

Besonders bedanken möchte ich mich bei Dr. Stephan Wethekam für die langjährige sehr gute Zusammenarbeit an der „EZR-Anlage“, für die zahlreichen anregenden Gespräche und Diskussionen, die vielen guten Ideen und Erklärungen sowie Hinweise auf relevante Veröffentlichungen. Er war jederzeit bereit, mir bei der Lösung von theoretischen oder apparativen Problemen zu helfen. Insbesondere bedanke ich mich für das kritische Korrekturlesen dieser Arbeit.

Ich danke Dr. Marco Busch für die gute Zusammenarbeit bei den Experimenten zur Beugung an Adsorbat-Überstrukturen und seine Ausdauer, insbesondere bei der Präparation der Schwefel-Überstrukturen. Vielen Dank auch für die kritische Durchsicht einiger Teile dieser Arbeit.

Ich bedanke mich bei Dipl.-Phys. Jan Seifert für die angenehme, unkomplizierte und produktive Zusammenarbeit bei der Analyse der Experimente an MgO(001) und $c(2 \times 2)\text{O}/\text{Fe}(110)$, sowie für das Korrekturlesen der entsprechenden Teile dieser Arbeit.

Ich danke auch meinem Studienfreund und Kollegen Dr. David Blauth für seine Hilfsbereitschaft und die gute langjährige Zusammenarbeit.

Gedankt sei des Weiteren allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe, insbesondere Herrn Dipl.-Ing. K. Maass für die Unterstützung bei allen technischen und elektronischen Problemen.

Mein Dank gilt Dr. Konrad Gärtner, für die schnelle und unkomplizierte Berechnung der in dieser Arbeit verwendeten HF-Paarpotentiale, die angenehme Kommunikation und die kritischen Beiträge zu unseren gemeinsamen Veröffentlichungen.

I would like to thank Dr. Maria Silvia Gravielle for the pleasant and fruitful collaboration.

Ich bedanke mich bei Dr. Ludger Wirtz für die effektive Zusammenarbeit, die Berechnung der He-LiF(001)-DFT-Potentiale und die theoretische Analyse des Beitrags der thermischen Schwingungen der Atome bei der Ableitung des Rumpings aus den experimentellen Daten.

Ich möchte mich bei Dipl.-Phys. Radoslaw Wlodarczyk und Herrn Dr. M. Sierka für die Berechnung der He-MgO(001)-DFT-Potentiale bedanken.

Ich danke Dipl.-Phys. Paul Tiwald und Dr. Christoph Lemell für ihr kontinuierliches Interesse an der theoretischen Beschreibung der experimentellen Ergebnisse aus der Regenbogenstreuung an Al-Oberflächen und für die Berechnung und Bereitstellung verschiedener DFT-Potentiale.

I want to thank Dr. Nenad Simonovic and Dipl.-Phys. Florian Aigner for discussions and for providing the results from a wave packet simulation of the scattering of He atoms from LiF(001).

Ich möchte mich beim Fritz-Haber-Instituts der Max-Planck-Gesellschaft für die Förderung im Rahmen der International Max Planck Research School „Complex Surfaces in Materials Science“ (IMPRS-CS) bedanken.

I want to thank all members of the IMPRS-CS for discussions and insights in a variety of different fields of physics and chemistry as well as foreign cultures.

Besonders bedanken möchte ich mich bei meinen Eltern, die mir das Studium der Physik ermöglichten, und bei meiner Freundin Karoline für ihre verständnisvolle Unterstützung auf dem langen Weg bis zum Abschluss meiner Dissertation.

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, Andreas Schüller, dass ich diese Arbeit selbstständig erarbeitet und verfasst habe. Ich habe keine anderen als die angegebenen Hilfen und Hilfsmittel verwendet. Ich habe mich nicht anderwärts um einen Doktorgrad beworben und besitze keinen entsprechenden Doktorgrad. Ich habe Kenntnis von der dem angestrebten Verfahren zugrunde liegenden Promotionsordnung.